

Japanese National Publication No. 11-512467/1999
(Tokuhyohei 11-512467) (Published on October 26, 1999)

(A) Relevance to claims

The following is a translation of passages related to claims 1, 3, and 8-12 of the present invention.

(B) Translation of the Relevant Passages

[Claims]

2. A method of processing moldings with a barrier layer from biodegradable material, ... using a viscous mass containing biodegradable fibrous material and starch ... which is baked in a baking mold ..., characterized in that the moldings are fabricated by forming a biodegradable liquid-tight fringe layer using a film coating, the film coating being formed by applying a film based on polyester, polyester amide or poly lactic acid onto the moldings which have been baked.

4. The method as set forth in claims 2 or 3, characterized in that the film is 20 μ m-200 μ m thick.

48. Moldings made of a biodegradable fibrous material, starch and water, ... or moldings characterized

11-512467/1999

THIS PAGE IS BLANK

by including a coating film based on polyester, polyester amide or poly lactic acid, ...

[Embodiments]

... Moreover, in the present invention, a polyester film, a polyester amide film, or a poly lactic film is used for forming the fringe layer, and in this case, the coating film is preferably elastic and provided directly on the moldings by thermo-sealing in a vacuum or under pressure, without using an adhesion accelerator.

By the film coating using the film based on polyester, polyester amide or poly lactic acid, it is possible to retrieve the film from a roll or a vent. The film may be provided on the moldings, which are still hot after being subjected to the baking process, using an adhesion accelerator or through fusion-bonding, or the film may be provided on the moldings, which are cooled down, using compressed air or mechanical push in a vacuum.

THIS PAGE IS BLANK

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表平11-512467

(43) 公表日 平成11年(1999)10月26日

| (51) Int.Cl. ⁸ | 識別記号 | F I | C |
|---------------------------|------|----------------|-------------------|
| C 0 8 J 7/04 | | C 0 8 J 7/04 | |
| C 0 8 L 1/12 | | C 0 8 L 1/12 | |
| | | 3/02 | |
| C 0 9 D 101/10 | | C 0 9 D 101/10 | |
| 103/02 | | 103/02 | |
| | | 審査請求 有 | 予備審査請求 有 (全 64 頁) |

(21) 出願番号 特願平9-511667
(86) (22) 出願日 平成8年(1996)9月12日
(85) 翻訳文提出日 平成10年(1998)3月11日
(86) 国際出願番号 PCT/EP96/04016
(87) 国際公開番号 WO97/10293
(87) 国際公開日 平成9年(1997)3月20日
(31) 優先権主張番号 PCT/EP95/03592
(32) 優先日 1995年9月12日
(33) 優先権主張国 世界知的所有権機関 (WO)
(81) 指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, L U, MC, NL, PT, SE), BR, CN, CZ, D E, FI, HU, JP, KR, NO, PL, US

(71) 出願人 エフファウバー フォルムフェアバクング
ゲーエムベーハー
ドイツ連邦共和国 D-01445 ラーデボ
イル ガルテンシュトラッセ 62
(72) 発明者 バール、アンドレアス ゲルハルト
ドイツ連邦共和国 D-01445 ラーデボ
イル フィヒテシュトラッセ 9
(72) 発明者 ゲベル、ヴォルフガング
ドイツ連邦共和国 D-01445 ラーデボ
イル アンドレアス-ホーファー-シュト
ラーセ 2
(74) 代理人 弁理士 恩田 博宣

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 生分解可能な材料からバリヤ層を有する成形体を製造するための方法及びその成形体

(57) 【要約】

異なる長さの繊維混合物の形の生分解可能な繊維材料、水及び澱粉を含みかつ繊維材料-澱粉-複合体を形成しながら焼き加工型内で焼き加工される粘性材料を使用し、生分解可能な材料から、バリヤ層を有する成形体、殊に包装成形体、を製造する方法並びにこの方法による成形体に関する。焼き加工後、成形体は、セルロースアセテート又はセルロースアセテートプロピオネートで、可塑剤なしに、含浸されて疎水性にされ、又はポリエステル、ポリエステルアミド若しくはポリ乳酸をベースとするフィルムを使用したフィルムコーティング被膜を有し、又は焼き加工後の粘性材料自体の疎水性含浸により疎水性特性を有する。

【特許請求の範囲】

1. 生分解可能な繊維材料、水及び澱粉を含む粘性材料を使用し、かつ繊維材料-澱粉-複合体を形成しながら焼き加工型内で焼き加工し、生分解可能な材料から、バリヤ層を有する成形体、殊に包装成形体、を製造するための方法において、繊維材料として、 $0.5\text{ mm} \sim 50\text{ mm}$ の範囲の繊維長さ又は繊維束長さの長い及び短い繊維又は繊維束から成る混合物が使用され、かつ成形体が、生分解可能な疎水性の縁層を含浸して、製造され、この場合縁層が、可塑剤のないセルロースアセテート及び／又はセルロースアセテートプロピオネートから成る、ことを特徴とする、生分解可能な材料からバリヤ層を有する成形体を製造するための方法。
2. 生分解可能な繊維材料及び澱粉を含む粘性材料を使用し、かつ繊維材料-澱粉-複合体を形成しながら焼き加工型内で焼き加工し、生分解可能な材料から、バリヤ層を有する成形体、殊に包装成形体、を製造するための方法において、繊維材料として、 $0.5\text{ mm} \sim 50\text{ mm}$ の範囲の繊維長さ又は繊維束長さの長い及び短い繊維又は繊維束から成る混合物が使用され、かつ成形体が、生分解可能な液密の縁層をフィルムコーティング被膜によって形成しながら、製造され、該フィルムコーティング被膜が、ポリエステル、ポリエステルアミド又はポリ乳酸をベースとするフィルムを、焼き加工された成形体に塗布することによって、形成されることを特徴とする、生分解可能な材料からバリヤ層を有する成形体を製造するための方法。
3. 生分解可能な縁層が可塑剤なしに形成されることを特徴とする請求項2記載の方法。
4. フィルムが $20\text{ }\mu\text{ m} \sim 200\text{ }\mu\text{ m}$ の厚さを有していることを特徴とする請求項2又は3記載の方法。
5. 含浸が疎水性溶液を使用して、噴霧、注型又は浸漬によって、行われることを特徴とする請求項1記載の方法。
6. フィルムコーティングが、真空又は正圧の作用及び／又は熱処理の作用下において、熱封により行われることを特徴とする請求項2乃至4の少なくともいずれ

れか1項記載の方法。

7. 含浸層又はフィルムコーティング被膜が弾性でありかつ有利には付着助剤なしに直接成形体に塗布されていることを特徴とする請求項1乃至6の少なくともいずれか1項記載の方法。

8. フィルムの、成形体に付着結合するために設けられているフィルム下面が、加熱されることを特徴とする請求項2～4、6及び7の少なくともいずれか1項記載の方法。

9. フィルム、殊に高い成形体用のフィルムが、成形体に塗布される前に、ラムによって予備伸延されることを特徴とする請求項2～4、6～8の少なくともいずれか1項記載の方法。

10. 成形体の、少なくとも、フィルムでコーティングされるべき付着面が、フィルムでコーティングされる前に、フィルムの融点温度に予備加熱され、次いでフィルムが塗布されることを特徴とする請求項2～4、6～9の少なくともいずれか1項記載の方法。

11. 疎水性縁層が含浸により形成され、又は液密のバリヤ層が、先行の焼き加工工程からの未だ熱い成形体へのフィルムの塗布により、形成され、かつ同時に又は続いて、成形体がコンディショニングされることを特徴とする請求項1～3の少なくともいずれか1項記載の方法。

12. 疎水性の生分解可能な縁層の厚さが $5\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ であることを特

徴とする請求項111の少なくともいずれか1項記載の方法。

13. 成形体が内側及び／又は外側に縁層を有していることを特徴とする、請求項1～12の少なくともいずれか1項記載の方法。

14. 含浸が多重塗布として設けられることを特徴とする、請求項1～5、7、11～13の少なくともいずれか1項記載の方法。

15. 縁層がバリヤ層として、液体、殊に水、酸性食品並びに油脂に対して障壁の作用を有していることを特徴とする、請求項1～14の少なくともいずれか1項記載の方法。

16. 縁層が、水蒸気、酸素及び芳香に対して、ほぼ液密及び気密のバリヤ層を

形成していることを特徴とする請求項15記載の方法。

17. 成形体の内側の縁層が、成形体の外側の、殊に疎水性縁層を有する表面よりも、高い耐水性及び／又は耐熱性及び／又は耐油脂性及び／又はガス若しくは芳香に対する気密性を有していることを特徴とする請求項1～16の少なくともいずれか1項記載の方法。

18. 成形体が内側表面に沿って、成形体の外側表面よりも厚い疎水性含浸層又はコーティング被膜を有していることを特徴とする請求項1～17の少なくともいずれか1項記載の方法。

19. 成形体が焼き加工型内で焼き加工され、次いで焼き加工型から取り出され、かつ焼き加工装置内で疎水性含浸又はフィルムコーティングを行うための別の装置内へ入れられることを特徴とする請求項1～18の少なくともいずれか1項記載の方法。

20. 焼き加工型の処理熱、有利には焼き加工装置内の処理熱又は、成形体を加熱する先行の焼き加工工程からの成形体の余熱及び／又は成形体上に設けられるべき疎水性媒体、殊にコーティングフィルムの熱が、成形体の後続の含浸又はコーティングのために、利用されることを特徴とする請求項1～19の少なくともいずれか1項記載の方法。

21. 含浸のために、疎水性物質としてセルロースアセテート及び／又はセルロースアセテートプロピオネート並びに殊に僅かに揮発性の溶剤を含む溶液が使用されることを特徴とする請求項1、5、7、11～20の少なくともいずれか1項記載の方法。

22. コーティングされた成形体にあるフィルムの断裁が、成形体が焼き加工型から取り出された後に、焼き加工型の蒸気放出通路に起因する余分な材料からの切り離しと共に、行われることを特徴とする請求項2～4、6～10の少なくともいずれか1項記載の方法。

23. 繊維材料を形成するために繊維を含有した粗製材料が使用され、該粗製材料が殊に予備粉碎されながら繊維状に解体されることを特徴とする、請求項1～22の少なくともいずれか1項記載の方法。

24. 繊維を含有した粗製材料が、古紙、リサイクル材料、殊に脱色された古紙、セルロース繊維を含む生産廃棄物、殊に木削屑、紙削屑、アブラナ細切片等の生分解可能な繊維材料であることを特徴とする請求項1～23の少なくともいずれか1項記載の方法。

25. 繊維材料が直接、生分解可能な繊維又は繊維束から成ることを特徴とする請求項1～24の少なくともいずれか1項記載の方法。

26. 繊維又は繊維束が0.5mm～5mmの範囲の長さを有していることを特徴

とする請求項25記載の方法。

27. 澱粉として、天然澱粉及び／又は予備粉碎された若しくは変性された澱粉が使用されることを特徴とする、請求項1～25の少なくともいずれか1項記載の方法。

28. 繊維を含有した原料の乾燥重量、殊に古紙の乾燥重量を基準として、粘性材料中の澱粉対繊維材料の比が15重量％～400重量％の範囲にあることを特徴とする請求項1～27の少なくともいずれか1項記載の方法。

29. 粘性材料を形成するために、繊維を含有した原料、殊に古紙の乾燥質量を基準にして、水がほぼ8：1まで、有利には2.5：1までの比で供給されることを特徴とする請求項1～28の少なくともいずれか1項記載の方法。

30. 粘性材料中の全澱粉含量における予備粉碎された又は変性された澱粉含量が、ほぼ20重量％～75重量％であることを特徴とする請求項27～29の少なくともいずれか1項記載の方法。

31. 粘性材料中における澱粉対水の含量がほぼ1：10、有利には1：3～1：2であり、かつ水が、粘性材料を形成するために、変性された又は過剰水のもとで予備粉碎された澱粉の形で、供給されることを特徴とする請求項1～30の少なくともいずれか1項記載の方法。

32. 粘性材料中における繊維材料含量が10重量％～30重量％、澱粉含量が5重量％～40重量％、水含量が70重量％～40重量％であることを特徴とする請求項1～31の少なくともいずれか1項記載の方法。

33. 粘性材料中における、予備粉碎された又は変性された澱粉含量が1重量％

～13重量%であることを特徴とする請求項1～32の少なくともいずれか1項記載の方法。

34. 繊維を含有した原料、殊に古紙が、粉碎され、次いで水の存在のもとで澱粉、有利には天然澱粉を供給されて、繊維組織まで戻され、次いで成形可能な粘性材料に形成され、続いて焼き加工されて成形体に製造されることを特徴とする請求項1～33の少なくともいずれか1項記載の方法。

35. 繊維を含有した原料、殊に古紙が、水の存在のもとで粉碎され、続いて澱粉、有利には天然澱粉を供給されて、繊維組織まで戻され、次いで成形可能な粘性材料に形成され、続いて焼き加工されて成形体に製造されることを特徴とする、請求項1～33の少なくともいずれか1項記載の方法。

36. 粘性材料の焼き加工前に粘性材料が調量されることを特徴とする、請求項1～35の少なくともいずれか1項記載の方法。

37. 繊維を含有した粗製材料又は直接使用された繊維材料が、その繊維長さ及び澱粉含量に関して、調べられ、かつ粉碎工程前又は粉碎工程後に等級に分けられることを特徴とする請求項1～36の少なくともいずれか1項記載の方法。

38. 天然澱粉の一部が、繊維を含有した原料の粉碎中に既に、充填剤を含むブリミックスとして、添加されることを特徴とする請求項1～37の少なくともいずれか1項記載の方法。

39. 澱粉の少なくとも一部が、繊維を含有した原料に、粉碎工程及び／又は後続の乾式若しくは湿式混合工程及び／又は後続の均質化する混合兼捏和工程に、天然澱粉及び／又は変性された若しくは予備粉碎された澱粉として、添加されることを特徴とする請求項1～38の少なくともいずれか1項記載の方法。

40. 澱粉が予備粉碎された澱粉及び天然澱粉として添加され、かつ天然澱粉に、該天然澱粉が繊維を含有した原料の粉碎工程に添加される前に、又は後続の

均質化する混合兼捏和工程に添加される前に、少なくとも充填剤が添加されることを特徴とする請求項1～39の少なくともいずれか1項記載の方法。

41. 予備粉碎された澱粉が直接混合兼捏和工程に、粘性材料を形成するために

、供給されることを特徴とする請求項27～40の少なくともいずれか1項記載の方法。

42. 粘性材料の形成が、異なる粉碎度及び異なる繊維長さの繊維含有原料を使用して行われることを特徴とする請求項1～41の少なくともいずれか1項記載の方法。

43. 材料が、焼き加工型内へ充填される前に、加熱されることを特徴とする請求項1～42の少なくともいずれか1項記載の方法。

44. 焼き加工型の少なくとも2つの焼き加工型板が、焼き加工工程の始めに、焼き加工工程中上側及び下側の焼き加工型板の相互間隔を一定に保持して、互いに錠止され、かつ両焼き加工型板の、その間に焼き加工される成形体材料が位置する、互いに向き合う内側表面の相互間隔が、焼き加工される成形体の壁厚を規定することを特徴とする請求項1～43の少なくともいずれか1項記載の方法。

45. 焼き加工工程中、焼き加工型からの水蒸気の排出が制御されることを特徴とする請求項1～44の少なくともいずれか1項記載の方法。

46. 焼き加工型の型中空室からの水蒸気の排出が、時間的及び／又は場所的に制御され及び／又は内圧制御により制御されることを特徴とする請求項45項記載の方法。

47. 厚壁及び／又は大きな面を有する成形体のために、有利には、50mmまでの繊維長さの長繊維又は長繊維束が使用され、殊に、0.5mm～20mmの繊維

長さ又は繊維束長さの短繊維又は短繊維束と混合した10mm～50mmの範囲の繊維長さ又は繊維束長さの繊維又は繊維束が使用されることを特徴とする請求項1～46の少なくともいずれか1項記載の方法。

48. 生分解可能な繊維材料、澱粉及び水から成っている、殊に請求項1から47までの少なくともいずれか1項記載の方法により製造された、生分解可能な材料から成る成形体、殊に包装成形体において、成形体が、0.5mm～50mmの繊維長さ又は繊維束長さの長繊維及び短繊維束の混合物を有し、かつ成形体が少なくともその片側に生分解可能な、疎水性の縁層を有し、該縁層がセルロースアセテート又はセルロースアセテートプロピオネートをベースとして可塑剤なしに形

成されており、又はポリエステル、ポリエステルアミド又はポリ乳酸をベースとするコーティングフィルムを有していることを特徴とする成形体。

49. 成形体の全面がコーティングされていることを特徴とする請求項48記載の成形体。

50. 厚壁及び／又は大きな面を有する成形体のために、有利には、50mmまでの繊維長さの長繊維又は長繊維束、殊に0.5mm～20mmの繊維長さ又は繊維束長さの短繊維又は短繊維束と混合された、10mm～50mmの範囲の繊維長さ又は繊維束長さの繊維又は繊維束が使用されていることを特徴とする請求項49記載の成形体。

51. 繊維材料含量対澱粉含量の比が4:1～1:4であることを特徴とする請求項48～50の少なくともいずれか1項記載の成形体。

52. 成形体が予備粉碎された又は変性された澱粉含量を有していることを特徴とする請求項48～51の少なくともいずれか1項記載の成形体。

53. 成形体が、殊に長繊維の弛められた繊維束と殊に短繊維の単繊維又は繊

維束との混合物を含んでいることを特徴とする請求項48～51の少なくともいずれか1項記載の成形体。

【発明の詳細な説明】

生分解可能な材料からバリヤ層を有する成形体を製造するための方法及びその成形体

本発明は、生分解可能な材料からバリヤ層を有する成形体、殊に包装成形体を製造するための方法及びこの方法による成形体に関する。本発明は殊に、生分解可能な繊維材料を含みかつ例えば湿った食品を受容するために十分な耐用性を有しかつ使用される地域の気候条件に相応する、リサイクル可能な、生分解可能な包装体として使用するための成形体を製造する方法に関する。

家庭及び産業においては、古紙並びに、セルロース繊維及び澱粉を含有した生産残留物が大量にでる。環境保護及び自然資源を大事にするという理由から、次第に広い範囲に亘って、再生された古紙も製紙用の出発材料として再使用されるようになっている。

他方、殊に包装の分野においては、しかしまたその他の分野においても、僅かな程度しか廃棄物管理を必要とせず、再利用のために解体可能（リサイクル可能）でかつ例えば堆肥化した場合には殆ど残留物を出さない、生分解可能な成形体を使用する差し迫った必要性が生じている。従って古紙並びに、セルロース繊維及び澱粉を含有した生産残留物、例えば木削屑又は紙削屑或いはまた脱色した古紙（脱インキ処理－材料）が、包装材としての成形体の製造用原料としても考慮されるようになっている。食品の包装では、リサイクルされた古紙で製造された製品はに、衛生上の要求をみたすために、特別の表面処理が施される。工業的に加工された古紙が専ら使用される場合には、法律的に定められた生産条件が保持されていれば、このような処理は省略される。

従って成形された包装体は繊維注型法で製造され、これは慣用の製紙の原理を基礎にしたものである。この場合粉碎された古紙及び水から成る繊維懸濁液が準備されて型シープ上に供給される。続いて脱水が行われて成形品が乾燥され、ま

た場合によっては圧縮を行うプレス処理が施されることもある。この場合の欠点は、例えばDE-4035887号明細書から公知であるようなこの方法の実施には、極めて高い経費が必要でありかつ所要水量が大きいため環境に対する負荷

が大きいことにある。また最近においては、プラスチックから製作され、殊に食品の包装に適する成形体を、古紙をベースとした製品に替えようとする試みもある。

ドイツ連邦共和国特許出願公開第DE-O S-3923497号明細書によれば食品用の多層包装シェルが公知になっており、その支持層は主に古紙をベースとするリサイクル材料から成っている。結合剤としてこの場合発泡プラスチックが必要である。このような包装シェルの製造には比較的高価な多段工程の方法が必要であり、この方法では粉碎された古紙材料が押出機を介して帯状の支持層へ案内され、続いてカバー層と結合された状態で深絞り若しくはプレス加工により包装シェルに成形される。製造中、支持層内の結合剤としてプラスチック顆粒を制御し調量して添加しなければならない。プラスチックが入っているためこのような包装シェルは、欠点として、完全に腐朽可能な有機材料から成るものではない。さらにこの製造は実施に高い経費を要するためコストが極めて高くなる。ワッフル生地練り粉をベースとする包装体は、食べられる包装体としても、また使用されている添加剤の関係で食べられない包装体としても、同様に公知である(E P-513106号明細書)。この場合難点はこのような包装体の長期間鮮度、弾性、破壊強度及び保存性にある。

最後に、溶かし次いで押出成形し冷却した澱粉を使用して主に澱粉をベースとする成形包装材料を製造することも公知である(E P-0304401B1号明細書)。このようにしてえられた包装材料の製品特性は、特に多くの目的に対して、澱粉をベースとした包装体の破壊強度が比較的低いためかつその吸湿性のため、完全に満足できるものではない。

セルロース、澱粉及び水をベースとする生分解可能な包装体を、それもワッフルのベーキング技術において使用されているような技術で製造することはWO-9

5/20628号明細書から公知である。

生分解可能な包装体で食品を包装する場合、このような包装材料の、水、水蒸気、脂、酸素、酸性食品及び香料に対する遮断性は重要である。特に生分解可能な包装体は、たんにこれらの媒体に対する十分な抵抗力を有していないだけであ

るから、多くの分野においてプラスチック又はプラスチック複合体から成る使い捨て包装体と等価のものではない。

液状食品の包装のために、ポリビニルアルコールから成る酸素を遮断するコア層を有していて、該コア層の両側に生分解可能なプラスチック、例えばポリヒドロキシシルブチレートがコーティングされている、生分解可能な包装材料を製造することは公知であり、この場合生分解可能なプラスチック層はさらに、これを環境条件から保護するために、長時間耐水性の層、例えばセルロース誘導体及び／又は紙で被覆されている（EP-0603876A1号明細書）。このような複合フィルムの製造は比較的経費が高くまた立体的な成形体にならない。

生分解可能な包装材料に水をはじく防水剤を含浸させることはEP-A-0474095号明細書から公知である。WO-95/13734号明細書によれば、例えばセルロースアセテート又はセルロースアセテートプロピオナートのようなフィルム形成物質で、澱粉をベースとする成形体に排水性若しくは水密の被覆を形成する方法が公知であり、この場合疎水性のフィルム形成物質と共に疎水性の腐朽可能な可塑剤が使用される。

ところで、多くの用途においては完全でかつ比較的長時間に亙る防水性バリヤ層は不要であり、また場合によっては生分解性を妨げることが判明している。可塑剤はさらに、ポリマー複合体から可塑剤に接触する食品内へ侵入する傾向を有しかつ耐煮沸性を減少させる。

本発明の課題は従って、高い表面品質、僅かな多孔性、高い構造的強度及び弾力性並びに十分な表面特性を特徴とし、その結果種々異なる温度の水及び／又は脂を含む食品を受容するのに適する、完全に腐朽可能な、生分解可能な材料から成る成形体殊に包装用成形体がえられる、コスト的に有利なかつ簡単な形式で実施することが可能である、生分解可能な材料からバリヤ層を有する成形体を製造する方法及びこのような方法による成形体を提供することにある。

この課題は、本発明によれば、はじめに述べた形式の方法において、繊維材料として、0.5 mm～50 mmの範囲の繊維長さ又は繊維束長さを有する長繊維及び短繊維又は繊維束から成る混合物が使用され、かつ成形体が、生分解可能な疎水

性の縁層を含浸させて、製造され、この場合該縁層が可塑剤のないプラスチック材料、殊にセルロースアセテート及び／又はセルロースアセテートプロピオナートから成ることを特徴とすることによって、解決されている。

上記の課題は、はじめに述べた形式の方法において、本発明によればさらに、繊維材料として、0.5 mm～50 mmの範囲の繊維長さ又は繊維束長さの長繊維及び短繊維又は繊維束から成る混合物が使用され、かつ成形体が、ポリエステル、ポリエステルアミド又はポリ乳酸をベースとするフィルムを焼き加工した成形体上に設けることによって形成されるフィルムコーティング被膜により生分解可能な液密の縁層を形成することによって製造されることにより、解決されている。

縁層はこの場合、有利には、成形体の焼き加工に続いて設けられた生分解可能な、疎水性の被覆として形成され、この場合該被覆は例えばセルロースアセテート又はセルロースアセテートプロピオナートのような疎水性材料を含む溶液の注型、浸漬、噴霧によって、形成され、この場合、予測することができなかったことであるが、可塑剤の添加及び、場合によってはまた付着助剤の添加も、被覆の付着性に不都合な影響を与えることなく、省略することができる。コーティングのさい成形体が既に冷えているか、又はこのコーティングが先行の焼き加工工程からの未だ高温である成形体に対して行われるようにするのが有利である。

例えば噴霧による含浸は、均一な薄い層の形成を保証し、また場合によっては、多重コーティングを行うことも可能である。さらに本発明によれば、縁層を形成するために、ポリエステルフィルム、ポリエステルアミドフィルム又はポリ乳酸フィルムが使用され、この場合これらのコーティング被膜は有利には弾性であり、かつまた有利には付着助剤なしに真空又は加圧下で熱封によって直接成形体上に（可塑剤を使用して又は使用しないで）設けられる。

驚くべきことには、セルロースアセテート又はセルロースアセテートプロピオナート（又は両者と溶剤の混合物）の含浸は、成形体中の繊維含量が高い場合にも、可塑剤なしで、また場合によっては付着助剤なしでも、成形体上への良好な付着性を示した。このためには含浸層又はコーティング被膜の十分な弾性が重要である。澱粉及びセルロースから成る成形体は、周囲空気と共に変化するほぼ1

0%の自然湿度を含んでいる。周囲空気湿度の変化によって成形体は伸縮する。従って縁層と成形体との確実な関係を保証するためには、縁層は十分な弾性を有しかつ基体材料（成形体）の形状変化に追従することができるものでなければならない。

はじめに述べた形式の、可塑剤のない、弾性的な、生分解可能なプラスチック材料は広い用途を開く。それというのは、可塑剤は常にポリマー複合体から成形体中に収納されている物品、特に食品中へ移行するからである。この移行量は、接触層（縁層）中の可塑剤濃度、食品中における可塑剤の可溶性及び当該包装体の使用温度に関連する。

本発明によればこの問題は完全に排除される。それというのはセルロースアセテート及びセルロースアセテートプロピオナートのような、可塑剤のない、生分解可能なプラスチック材料が含浸剤として使用されるからである。

疎水性縁層を有する成形包装体の製造に可塑剤の使用を断念したことによって、この成形包装体は沸騰水に対してもまた高温の油脂に対しても問題なく使用可能であることが判明した。

使用目的による包装成形体に対する諸要求に関連して、疎水性縁層は噴霧、注型又は浸漬により、 $20\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ の厚さのフィルムの形で設けることも可能である。

フィルム材料、殊にポリエステルフィルム、ポリエステルアミドフィルム又は殊に弾性のポリ乳酸フィルムは、使用目的及び必要なバリヤ要件に関連して、フィルムの融点及び厚さを選択可能である。成形体へのフィルムの耐久的な付着性にとって重要なことは低温状態でのフィルムの弾性である。附着性は成程付着助剤によって改善されるが、しかし特別の付着助剤層の使用なしに含浸及びコーティングを成形体上に行うのが有利である。フィルムコーティングは、先に挙げた物質をベースとする、可塑剤のない、又は生分解可能な可塑剤を含んだフィルムで行われる。フィルムは単層又は多層であることができる。

本発明の方法の有利な一実施例によれば、フィルムはその、成形体との付着結合のために設けられた下面を、その融点近くまで加熱され、これに対して該フィ

ルムの上面は明らかにより低い温度にとどめられる。

フィルムは場合によってはラムにより、成形体上に付着される前に、予備的に伸延してもよい。フィルムの下面の予備加熱が不可能である場合には、一つの選択的手段として、成形体をフィルムで被覆する前に、フィルムの溶融温度を上回る温度に予備加熱し、続いてフィルムを加圧又は真空により付着させることも可能である。

本発明による方法の別の有利な一実施例によれば、焼き加工材料を疎水性にするために、該焼き加工材料に、例えばセルロースアセテート、セルロースアセテートプロプリナートのような疎水性物質又はこれらの混合物、合成的に又は生物学的に製造された生分解可能なポリエステル又はポリエステル誘導体、殊にポリアテルアミド又はポリ乳酸が添加され、その結果焼き加工された成形体は、焼き

加工工程の終わりには既にそれ自体で疎水性特性を有し、殊に液体の浸透を如何なる場合にも長時間に亘って防止する縁層を有する。

有利な一方法によれば、少なくともしばらくの間低温又は高温の液体を遮断する焼き加工された成形体の被覆を形成するために、成形体がまず蒸気でコンディショニングされ、続いて付着助剤が塗布され、さらに続いてコーティングが行われる。

焼き加工材料の準備に関して言えば、成形体は主に生分解可能な材料から成っており、該材料は澱粉の粉碎に基づいて澱粉で補強され、繊維材料-澱粉-複合体に形成されている。

使用される出発原料、即ち繊維含有の粗製材料若しくは生分解可能な直接使用することも可能な繊維の種類及び所定の使用目的に関連して、さらに包装体の形態（焼き加工工程中の焼き型の深さ）に関連して、使用材料の水、生分解可能な繊維材料及び澱粉の混合比に関する、並びに使用される粉碎-均等化及び焼き加工技術に関する、処理パラメータの可変域が生じる。

本発明による方法の有利な一実施例によれば、繊維材料含量が比較的高い材料、即ち古紙及びセルロース繊維及び澱粉含有の生産残留物含量若しくはその他の、例えばアブラナ植物細片のような生分解可能な繊維材料含量が比較的高い材料

が使用され、この場合このようにして製造された成形体の包装材料として優れた特性がえられる。成形体若しくはこのように製造された包装材料は迅速に生分解可能であり、かつ高い経費を要することなくリサイクル可能である。古紙及び、例えば木及び紙の屑、アブラナ植物の細片等のセルロース繊維及び澱粉含有の生産残留物の使用は、澱粉含量が比較的少ない場合でも、ワッフルベーキング技術のエレメントを利用した最終焼き加工工程での均質化された粘性材料の最終処理により、驚く程価値の高い、かつ繊維材料-澱粉-複合体による極めて耐久性のある弾性の、殊に包装用の成形体が、同時にコスト的に有利なかつ環境を損なわな

い形で、製造される。

他面において本発明による方法は、明らかに少ない繊維材料含量で、有利には繊維材料と澱粉との割合が1：4までの繊維材料含量で、粘性材料の10重量%～30重量%の繊維材料含量で、並びに粘性材料中の変性された又は予備粉碎された澱粉又は澱粉含量（粘性材料中における変性された又は予備粉碎された澱粉含量は1重量%～13重量%である）の20重量%～30重量%の繊維材料含量で、実施することができ、この場合形状安定性が極めて高い成形体がえられ、繊維材料はこの場合粗製繊維材料として使用される。

本発明による方法の有利な実施形態並びに成形体の組成は従属請求項に示されている。

成形体に関して、はじめに述べた形式の成形体における前記の課題は、成形体が、0.5mm～50mmの繊維長さ又は繊維束長さの長繊維及び短繊維から成る混合物並びに少なくとも一方の側に生分解可能な疎水性縁層を有し、該縁層が可塑剤なしにセルロースアセテート又はセルロースアセテートプロピオナートをベースとして形成されており又は、ポリエステル、ポリエステルアミド又はポリ乳酸をベースとするフィルムコーティング被膜を有することによって、解決されている。このフィルム被膜のコーティングは可塑剤を使用して又は使用しないで行うことができる。

含浸用溶剤としてはエタノール、アセトン又はエチレンアセテートを使用する

ことができる。

成形体は有利には多孔性の内部組織を有し、該内部組織はより高い密度の周囲外皮層によって閉じられ、この場合外皮層は、有利には付着助剤層を間に介在させることなしに液密の被膜を支持している。

本発明による成形体の有利な構成は残りの従属請求項に示されている。

本発明は以下において実施例及び所属の図面につき詳細に説明される。

図面中；

図1は繊維含有の原料としての古紙の使用に基づく成形体製造方法のフローチャート図である。

図2は既に予め粉碎され脱色された古紙材料（脱インキ処理材料）の使用に基づく成形体製造のための別の一実施例のフローチャート図である。

図3は紙削屑、アブラナ植物細片、木削屑のような繊維を含有した原料として生産廃棄物を使用することに基づく成形体製造方法のさらに別の一実施例のフローチャート図である。

図4a及び4bは、それぞれ繊維材料の乾燥質量に対する、水含量が一定で天然澱粉の使用量が異なる、種々異なる試験標本の表である。

図5a及び5bは、それぞれ繊維材料の乾燥質量に対する、水含量が一定で天然澱粉及び予備粉碎澱粉の使用量が異なる、種々異なる試験標本の表である。

図6は、使用された繊維材料長さを等級化して示した表及び相応するグラフである。

図7は、前記方法の一つによる成形体製造のための焼き加工工程の圧力－時間－線図である。

図8は、使用された焼き加工型の型深さ及び等級に分けられた繊維材料に関連する成形体の製品評価のための表である。

図9は、使用された焼き加工型の型深さ及び繊維若しくは繊維束長さを異にする繊維材料混合物に関連する成形体の製品評価のための表である。

図10は、繊維含有材料としての古紙をベースとする成形体製造のための調合

表である。

図11は、成形体を示すための、殊に粗製繊維材料を使用するための調合表である。

図12は成形体の壁区分の拡大横断面図である。

図13は、セルロースアセテートを使用してY14（図4b, 5b, 11参照）による調合でトレイ及び鉢に疎水性含浸（噴霧コーティング）を行うための実施例を示す図である。

図14は、セルロースアセテートプロピオネートを使用してY14（図4b, 5b, 11参照）による調合でトレイ及び鉢をコーティングするための実施例を示す図である。

図15は、ポリエステル、ポリエステルアミド及びポリ乳酸をベースとするフィルムでトレイ及び鉢をフィルムコーティングするための実施例を示す図である。

図16は、可塑剤を使用し又は使用しせずにセルロースアセテート又はセルロースアセテートプロピオネートでコーティングした成形体の製品評価のための表である。

図17～20は、本発明の方法の実施例によって製造された成形体の種々異なる実施例を示す図である。

本願の枠内において繊維材料又は繊維組織という概念は、原料が単繊維まで並びに、繊維を含有した原料の専ら比較的大きな繊維束まで解体されるために使用されている。

本願の枠内において「疎水性含浸若しくは液密のコーティング」という概念は、材料及び層厚に関連してたんにある所定の、場合によっては比較的短い時間しか作用しないようなバリヤ層を設けることも含む。従って、室温（25～40℃）及び0～90%の周囲の相対湿度において数日間の間、成形体が液体に対して有する耐用性についてもこのように呼ばれる（適用等級クラスA1）。さらに、効果の点で24時間に互る冷水に対する耐用性についてもこう呼ばれ、この場合包装物は室温（25～40℃）又は室温より低い温度を有している（適用等級ク

ラスA2)。最後に、生分解可能な疎水性の縁層を形成（有利にはコーティング）するということは、少なくとも30分、有利には1時間の煮沸水に対する強度を有する場合についても言われ、この場合包装物は95℃の温度を有することもある（適用等級クラスA3）。この場合成形体はその形状安定性を失わずかつ成形体組織内への感知できる浸透が避けられる。

「疎水性含浸」という概念は、本願の枠内においては、水又は油脂を排斥する何らかの性質（閉じた縁層ではなく、多孔性の滴状又は飛沫状のコーティング被膜）からバリヤ層における意味での実際の防水性までの、疎水性の全範囲を含み、後者は部分的に多層の含浸ではじめて達成することができる。

図1は古紙をベースとして包装成形体を製造するための方法の第1実施例を示す。しかしこの方法の枠内では粗製材料（粗製繊維材料）も、殊に材料中の繊維含量が低く澱粉含量が高い場合に、使用することができる（図4b, 5b, 11の実施例参照）。

図1では、場合により付加的に使用される材料（例えば予備粉碎された澱粉、充填剤、溶剤、着色剤）又は選択的処理工程で使用される材料の供給が破線で、実線で示されている使用可能性と組み合わせて、示されている。

第1の方法工程では古紙は乾燥した状態で粉碎され、この場合この粉碎は、有利には、材料を損なわないように非切削的に、例えばシュレッダー、藁切機又はピンディスクミル若しくはハンマミルのような粉碎機で行い、紙繊維が実質的に細かい切片に切断されないようにすべきである。それというのは細かい切片に切断された場合には、古紙のセルロース繊維の吸水力が高められることによって後続の処理工程での吸水量が著しく大きくなるからである。粉碎工程ではほぼ10mmまで、有利にはほぼ5mmまでの古紙切片に粉碎される。厚壁及び／又は大きな面を持った成形体の製造のためには自己安定性を改善するために、50mmまでの繊維長さ若しくは繊維束長さの繊維又は特に弛められた繊維束を使用することができる。このような用途の場合にも、有利には、ほぼ10mm～50mmの範囲の比較的長い繊維又は繊維束と0.5～20mmの範囲の短い繊維又は繊維束との混合物が使用される。

比較的長い繊維束が使用された場合には準備的な粉碎経費は相応して低減する。

説明された他の実施例においても同様であるが、繊維束を弛めることは、繊維束—中空室内へ侵入することができる粉碎された澱粉との比較的密な結合を生じ、その結果繊維／繊維束—組織（互いに「クロスリンキング」した繊維／繊維束）の形成が促進されかつ澱粉基地が重ねられ、水蒸気中において加圧下で行われる焼き加工工程で繊維束と澱粉との密な結合がえられる。

粉碎工程は、有利には、粉碎工程にある古紙細片の繊維束が弛められるように行われる。

このようにして材料を損なうことなく粉碎されほぼ裂断された古紙は繊維組織まで解体され、水の供給、軟化及び、さらに弛められることにより、混合—捏和

工程で繊維状に解体されかつ均質化されて粘性材料になる。

有利には間欠的又は連続的に運転される捏和機若しくは混合機及び捏和機が使用される混合—及び捏和工程は水の存在のもとで行われる。

粘性材料中の他の成分に関連して、特に澱粉含量（その十分な粉碎には著しく多量の自由水を必要とする）に関連して、水含量を出来るだけ少なく抑えることが、その結果後続の成形工程（焼き加工工程）を効率的に実施するために、有利であるから、多くの優れた用途（高い強度の成形体、高い密度の組織）では、古紙の乾燥質量を基準にして、水含量が2：1～3：1、特に2.5：1であるのが有利である。同時に材料中へ天然澱粉、例えば天然穀物—、ジャガイモ—、トウモロコシ—又は米—澱粉が入れられる。このような粘性材料を均質化するための混合—及び捏和工程はやはり、繊維を傷めないように、ひいてはまたセルローズ繊維による水の吸収量を少なくするために、実際には完全にせん断によって、換言すれば、材料粒子間若しくは材料粒子と捏和—又は混合部材との間のせん断力によって、従って内部摩擦によって、行われ、その結果古紙細片が傷められることなく繊維組織まで解体される。

「繊維組織」という概念は本願の枠内においては単繊維まで解体されたもの及び出発原料の専ら比較的大きな、有利には弛められた繊維束まで解体されたもの

を含む。

多くの場合、解体はたんに繊維束まで行うのが有利である。それというのは、これによって、澱粉の粉碎化と関連して、強固なクロスリンク組織及び繊維束-澱粉-複合体がえられるからである。

澱粉と繊維材料との比は粘性材料中において広い範囲内で、殊に使用される分野及び製造された成形体の品質に対する要求に関連して、可変である。

高い弾性と共に特に滑らかな表面をうるために、構造的強度に著しく寄与する弛められた繊維束の使用に制約されて、澱粉含量は、例えば繊維材料対澱粉の比が1:4である場合、実質的に50%（古紙の乾燥重量を基準にして）を上回ることができる。

澱粉は有利には天然澱粉として混合される。古紙の乾燥質量を基準にしかつ水過剰量を2.5倍とした場合の、天然澱粉と繊維材料との混合比（古紙）は図4に示されている。

古紙細片をその繊維組織（有利には繊維束）まで解くための図1における第2の方法工程（捏和-及び混合工程）においては、水を供給しかつ材料を弛めることによって古紙細片を軟化する前処理工程が区分されており、この場合この前処理工程においても、溶剤、特に後続の焼き加工工程における粘性材料の流動特性の改善のためのアルカリ性添加物、充填剤又は着色剤を添加することができる。さらに、充填剤を天然澱粉又はその粒子と予備混合すること及び乾式粉碎に前置された方法工程中に既に部分的に添加すること又は全混合中、古紙をその繊維組織まで解体するための混合-及び捏和工程を実施しながら水の存在のもとに行われる粘性材料の形成中に、添加することも可能である。

後にさらに正確に説明されるように、殊に有利な方法の実施形態では、一方においては、後続の焼き加工工程中に予備粉碎状態によって規定された水量を準備するために、又は、後続の焼き加工工程における材料の滞在時間が極めて短い場合にも安定した繊維-澱粉-複合体を形成するための澱粉の粉碎化がえられるようにするために、天然澱粉に対して付加的に変性された又は予備粉碎された澱粉を使用することも可能である。図1において任意に付加的に使用される予備粉碎

された澱粉分が供給される場合には、自由な水の供給が制限されることがある。

表面品質、弾力性、接合構造、組織及び強度に関する特に良好な成果は、製造された成形体において、天然澱粉と予備粉碎された澱粉とから成る混合物の他に

同時に、繊維長さの異なる繊維材料から成る混合物、特に異なる長さの繊維束を使用した又は単繊維と結合した繊維束を使用した混合物が使用された場合に、えられた。この詳細は後に別の実施例について説明する（図6参照）。

充填剤としては殊に、白亜、カオリン、滑石、石膏、アルミナ、二酸化チタン又は酸化アルミニウムが挙げられる。溶剤としては、炭酸マグネシウム、マグネシウムヒドロキシドカーボネイト、苛性ソーダ液又は水酸化アンモニウムが使用される。水、有利には古紙材料の乾燥質量の2.5倍の含量の水は、一方では、材料の流動—泥状の粘性から高い粘性の塑性の粘稠度をうるために必要な量が、他方では後続の焼き加工工程において澱粉を粉碎するために必要な量が供給される。

しかし殊に、天然澱粉に対して付加的に予備粉碎された澱粉が使用されない場合には、より多量の水過剰量で作業を行うことも可能である。粘性材料の混合及び捏和においては、一方では古紙がその繊維組織、この場合有利には比較的大きな繊維束まで解体され、他方ではこの繊維束（又は単繊維も）が密にかつ均質化されて澱粉と混合されかつ軟化された紙組織と澱粉との間に密な結合が生ぜしめられる。

続いて、粘性材料が均質化された後、この粘性材料は、少なくとも1つの焼き加工型内へ後に導入するために、調量され、かつ該焼き加工型内へ入れられる。焼き加工型はこの場合少なくとも2つの焼き加工板、即ち上側及び下側の焼き加工板（焼き加工鉗子内に受容されている）から形成されており、この場合焼き加工板の内側表面は、焼き加工型が閉鎖され錠止されている状態では、型中空室を形成しながら、互いに離して保持されており、該型中空室には粘性材料が充填される。勿論同時に多数の成形体を製造するために多数の焼き加工鉗子を使用することが可能である。

同4aでは、15の試験標本について、それぞれ古紙—繊維材料（繊維束）の

乾燥質量に対する、水量を一定（2.5倍）に保持した場合の天然澱粉の使用量が示されている。

図4bでは、15の別の試験標本Y1～Y15について、それぞれ繊維材料（繊維束）の乾燥質量に対する、水量を一定（5倍）に保持した場合の天然澱粉の使用量が示されており、この場合繊維材料として殊に粗製繊維材料を使用することも可能である。

天然澱粉及び予備粉碎された澱粉から成る有利な使用については、図5aの表に天然澱粉使用量と予備粉碎された澱粉の使用量との有利な比が示されている。天然澱粉使用量と予備粉碎された澱粉の使用量との比がほぼ3：1の場合が有利であることが判明した。

さらに別の試験標本－実施例について、図5bは天然澱粉使用量と予備粉碎された澱粉の使用量との有利な比を示している。澱粉対繊維材料の比1：2～4：1の全混合比においてこの場合天然澱粉と予備粉碎された澱粉との比は1：3からほぼ3：1の間で変化する。

材料（繊維材料含量、有利には10重量％～30重量％）中において繊維材料含量が減少した場合の澱粉含量の増大に関連して、例えば粘性材料中における繊維材料対全澱粉の比1：4（重量％分）に関連して、変性された又は予備粉碎された澱粉対全澱粉の使用量比は1：5から1：2の範囲へ広がることことができる。粘性材料中における変性された又は予備粉碎された澱粉含量はほぼ13重量％まで増大することことができる。

さらに、本発明により製造された成形体における有利な特性は、粘性材料中における澱粉対水の比がほぼ1：10～1：1、特に1：3～1：2である場合に観察された。

技術的にはワッフルのベーキング技術の基礎エレメントに基づいている焼き加工工程は、上側の焼き加工型板と下側の焼き加工型板との間の、材料が充填される型内の中空室を残して、焼き加工型が閉鎖されかつ錠止されるとともに、開始される。上側の焼き加工型板と下側の焼き加工型板とを錠止することによって焼き加工工程中一定に保たれる間隔は、製造される成形体の壁厚を規定する。

時間的経過が図7の圧力－時間－線図に示されている焼き加工工程は105℃～300℃の温度で行われ、この場合たびたびほぼ180℃の温度で、成形体の焼き上がり及び成形体のその他の点に関して特に良好な成果が達成された。焼き加工時間は種々異なるパラメータ、殊に材料の粘性(含水量)、澱粉含量(持続時間は天然澱粉の完全なかつ一貫した粉碎を、粉碎が場合により使用される変性若しくは予備粉碎された澱粉と協働して行われる場合にも、可能にするだけの時間でなければならない)、成形体の形状及び具体的な材料構成成分、に関連する。

一般的には0.5～15分の焼き加工時間の間で変化することができ、この場合1～3分の範囲内の比較的短いサイクル時間で一般的には十分であり、滑らかな高い表面品質、高い弾力性及び構造的な強度をもった標準的な成形体が、繊維－若しくは繊維束－澱粉複合体、繊維補強された澱粉基地の形成に基づいて、えられる。

別の場合、殊に水含量が比較的高い場合、3～13分の焼き加工時間でも良好な成果がえられ、この場合、方法実施の効率を高めるため、焼き加工時間は、繊維束－澱粉基地の均質な内部組織形成を損なうことなく、出来るだけ短くするのが有利である。

図7には焼き加工型の時間に対する型閉鎖力がプロットされており、この場合図示の焼き加工工程中の圧力上昇は材料中の水の蒸発及び蒸発過程に基づく圧力上昇である。完全な成形体を形成するためには、閉鎖力が、一方では、焼き加工型の閉鎖ボルトのところで検出された、水の蒸発による型内圧を示すほぼ150

kpの最小力を越え、かつ他方では、閉鎖ボルトのところに生じる最大力、この場合ほぼ256kpの力によって示される最大内圧を著しく越えないこと又は余分に上昇することが重要である。

図7においてt1は、焼き加工型の閉鎖から焼き加工型内の最小蒸発圧力を表わす型閉鎖力値f_{mim}に達するまでの時間を示し、t2は焼き加工型の閉鎖から焼き加工型内の最大蒸発圧力を現す閉鎖力値f_{max}に達するまでの時間を示し、t3は焼き加工型の閉鎖から水蒸気発生を終了までの時間を示し、t4は焼き加工終了までの若しくは焼き加工された成形体が乾燥される時間を示し、t5

は焼き加工型の閉鎖から開放までの全焼き加工時間を示す。この場合閉鎖力差 $f_{\max} - f_{\min}$ がほぼ 100 k p のときに成形体の良好な品質及び成形性がえられ、この場合 t_5 は $1 \sim 3$ 分の範囲内の有利な焼き加工時間を示す。

差 $t_3 - t_4$ は従って蒸気発生下における焼き加工工程及び成形に相当する。焼き加工工程において（場合によっては予備粉碎された澱粉の水分吸収のもとで）天然澱粉は粉碎され硬化する。古紙の弛められた繊維束組織内へ澱粉が侵入せしめられ、粉碎によって生じる澱粉-基地を有する弛められた繊維組織の安定した形成がえられる。

天然澱粉が専ら使用された場合には、この形式の成形体は弾力性及び表面品質に関して既に多くの用途で十分に使用可能である。澱粉含量が高いことは確かに弾性を低下させると共に良好な表面を生じさせるものであるが、澱粉含量を少なくすることによって成形体の弾性を減少させることは、通常は滑らかな表面を犠牲にすることになる。しかし本発明による方法によれば、天然澱粉の他に変性された若しくは予備粉碎された澱粉が使用されることにより、高い表面品質が保証されると同時に、弾性の著しい改善が達成される。予備粉碎された澱粉と天然澱粉との混合物を使用したことによる特別の効果は、古紙の高い吸収性能に制約されて、焼き加工工程において天然澱粉の粉碎に遊離水若しくは焼き加工時間が十分使用されできないことに基づいている。導入された天然澱粉は従って従来の製

品においては何倍も不完全にしか粉碎されず、このようにしてえられた成形体の弾性に関しては広いばらつきが生じる。

本発明によれば、その特性に関して澱粉をベースとした従来の成形体を著しく越える特性が、澱粉の一部が水の存在のもとで予備粉碎されかつ粘性材料に予備粉碎された澱粉が添加されることによってえられ、この場合、含量は、既に上で説明されたように、図4及び5の試験データ列に示されている（全澱粉含量）。天然澱粉、予備粉碎された澱粉及び水の含量はそれぞれ古紙の乾燥質量に対する含量である。

本発明による方法の枠内では、天然及び変性若しくは予備粉碎された澱粉の使用の他に、出来上がった成形体の表面品質、弾性、組織構造及び強度に関して、

異なる長さの繊維材料、殊に異なる長さの繊維束又は比較的長い繊維束と比較的短い単繊維との混合物の使用が特に有利であることが判明した。繊維長さは薄壁の成形体では、0.5～5 mmの範囲が有利であり、この場合繊維別（等級）の概観は図6に示されている。

図1の方法のバリエーションによれば、古紙の粉碎を、場合によっては天然澱粉及び充填剤を供給して、乾燥状態で行うのではなく、水の存在のもとで適宜の粉碎ミキサー内で機械的に行うことが可能である。

予備粉碎された澱粉分の使用に関しては、ベーキング技術に適合した変性された澱粉の使用が可能である。

生分解不能のプラスチック包装体に代わる、このようなベーキング技術的に製造された成形体の用途を、例えば湿分を含んだ食品の包装体又はスープ、サラダ又はその他の湿性食品をポータブルに収納する使い捨て一包装体として、広げるためには、成形体が、基本的にはその生分解性を失うことなく、十分な耐湿性を有していなければならない。

このためには、焼き加工した成形体を、「インーライン」工程において、場合によっては焼き加工型から成形体を取り出して、焼き加工装置の別の区分内へ入れ、疎水性に含浸し若しくはコーティングするのが有利であり、これは焼き加工装置外でも、特定のコーティング装置に関連して、焼き加工工程の処理熱を利用しながら、未だ熱い若しくは既に冷えた成形体に行うことができる。

いずれにしろ「インーライン」コーティング法のためには、焼き加工型に直接隣接してかつ焼き加工装置内に焼き加工工程とこれに続くコーティング工程のための1つの共通の駆動手段及び焼き加工工程とこれに続くコーティング工程との間の調整制御手段を設け、場合によっては焼き加工された成形体を型から出すための及び焼き加工された成形体をコーティング装置内へ入れるための操作装置を使用するのが有利である。

疎水性含浸剤の塗布若しくはコーティングにより焼き加工された成形体を疎水性にするための有利な方法は、噴霧溶液を（場合によっては数回）塗布することから成り、該溶液は疎水性物質として、セルロースアセテート（CA）、セルロー

スアセテートプロピオネート (CAP) 又は両物質の混合物を含みかつ噴霧、注型又は浸漬により内側及び／又は外側から成形体に塗布され、この場合疎水性特性の必要度に関連して防水性又は防油脂浸透性のコーティングが、これに関連して縁層を形成することなく、行われ (例えばハンバーガー包装用)、又はより大きな層厚の場合にも実際の液密性及び連続的な縁層 (バリア層) の形成が保証される。これについての実施例は図13及び14に示されている。

セルロースアセテートはこの場合、有利には、噴霧溶液中における、溶剤としてアセトンを含む4.5重量%～15重量%の乾燥物質含量で、20～4000 mPas の噴霧溶液の粘度において使用され、これに対してセルロースアセテートプロピオネートは、有利には200～6,000 mPas の粘度を有する噴霧溶液中、9重量%～20重量%の乾燥物質重量比で使用され、この場合やはり有利にはアセトンが溶剤として使用される。

セルロースアセテート及びセルロースアセテートプロピオネートから成るバリア層はこの場合可塑剤なしにかつ有利には付着助剤もなしに塗布され、この場合驚くべきことには、この疎水性含浸は成形体の繊維含量が比較的高いときにも優れた付着特性を有することが判明した。このようなコーティングにより、ポリマー複合体から成る可塑剤の、包装された食品内への移行によって引き起こされる全ての問題がはじめてから根本的に排除される。

場合によっては含浸を付着助剤を介して行うことも勿論可能である。

疎水性化と同時に又はこれに続いて成形体を水蒸気でコンディショニングすることが可能である (水分の導入による可撓性の増大)。

図11にさらに別の試験標本について示されているように、この方法は、先に述べたCA-若しくはCAP-含浸に関してもまた後述のコーティング法に関しても、殊に粗製繊維材料を使用して、また少ない繊維材料含量及び高い澱粉含量でも、実施することができる。

溶液-コーティングとしての上記物質 (可塑剤なし) の塗布に代わる選択手段として、ポリエステル、ポリエステルアミド又はポリ乳酸をベースとするフィルムにより成形体をコーティングすることによっても優れた成果がえられた。この

場合殊に弾性フィルムが極めて高い付着性能を有することが判明した。このようなフィルムコーティングは圧力下で又は真空下で行うことができ、この場合深い型では加圧ラムによりフィルムの予備伸延が有利に行われ、またフィルムはその成形体に面した付着側を予備加熱され又はまだ熱い成形体（処理熱若しくは焼き加工工程からの成形体余熱の利用）がフィルムの付着状態を改善するため加熱される。

このようなフィルムは単層で又は多層であり、また可塑剤の使用、付着助剤の使用は任意に選択できる。これについては図 15 の表による実施例が示されている。フィルムコーティングは実際には常に液密の被膜を生じ、これは部分的に、殊にポリ乳酸（弾性）をベースとするフィルムを使用した場合には、耐煮沸性の特性を生じる。

セルロースアセテート若しくはセルロースアセテートプロピオネートを使用した前記の噴霧コーティングについては、図 16 に、従来の手段（10～30重量%の可塑剤を使用）と、可塑剤を使用することなしにCA若しくはCAPを本発明により使用した手段とが示されており、この場合セルロースアセテートを使用した場合には中くらいの普通の付着性能がえられたが、これに対してセルロースアセテートプロピオネートを使用した場合には驚くべき優れた付着性が疎水性可塑剤の使用なしにえられた。

選択的方法過程（方法II）においては、水蒸気-コンディショニングと同時に、焼き加工された成形体のコーティングを生分解可能な液密性材料の噴霧により行うことも可能である。続いてこの場合にも有利には熱蒸気による成形体の殺菌が行われる。

さらに、別の実施例では、危険性のない液密な縁層を全製品に互り生分解可能に形成すること若しくは成形体の徹底した全体的含浸を、微細に細分可能な流体、粉末、又は顆粒としての粘性粗製材料へ使用材料（CA，CAP，ポリエステル，ポリエステルアミド，ポリ乳酸）を導入してこれを焼き加工工程中、場合によっては形成される繊維-澱粉-複体内へ溶融し埋め込み、かつ成形体材料内にほぼ均一に分配し、焼き加工終了後に液密な、しかも生分解可能な成形体にす

るという方法で行うことも可能である。

図1の方法は、従って、焼き加工工程に続く液密コーティングの塗布に関して、ガス透過及び液浸透に抗するバリヤ層を形成する材料を先行する方法段階において焼き加工材料の準備工程で既に添加し、焼き加工材料を疎水化しながら一体の

液密な成形体にするように、変形することができる。

図12は、実施例1による方法で製造された成形体の壁区分の横断面の略示図である。蒸気の発生及び焼き加工工程中に成形体材料内に生じる過圧により、両側を外皮層21で制限された弛められた基礎材料層20が形成され、該基礎材料層20内には、長繊維及び短繊維の生分解可能の繊維又は繊維束から成る混合物と関連して澱粉-繊維材料-組織が形成される。上側外皮層21には液密のコーティング被膜23が続いている。場合によっては付着助剤層を間に介在させることも可能である。この場合成形体は片側（より高い負荷を受ける内側表面）にのみ疎水性のコーティング被膜23を有している。勿論疎水性（この層の液密性を含む）コーティング被膜23は、場合によってはそのバリヤ特性に関して異なる品質のものを、成形体の内側及び外側に形成することも可能である。バリヤ層若しくは液密のコーティング被膜23は基礎材料層20の両側において異なる特性又は厚さを有していてもよく若しくは異なる疎水性材料から成っていてもよい。

疎水性含浸若しくはコーティングはコーティング材料内へ成形体を浸漬することによって又はセルロースアセテート若しくはセルロースアセテートプロピオネートの疎水性溶液の噴霧によって行うことも場合により有利である。図15によるフィルムコーティングに関して言えば、コーティングは、真空下、圧力空気又は機械的押圧によるフィルム付着によって行われるが、この場合フィルムの縁部の余り分は、焼き加工された成形体の材料余り分と一緒に除去され、蒸気排出通路から排出される。

場合によっては、成形体の内側だけにある疎水性の、殊に液密の縁層を形成するために、上記の疎水性材料の一つから成る溶融物を焼き加工型内にある成形体中間製品上に塗布し、成形体が縁層を形成しながら焼き加工されるようにするこ

とも可能である。

水密の、生分解可能な縁層の厚さは、例えば $20\mu\text{m}\sim 200\mu\text{m}$ の範囲のフ

ィルムが使用される場合、有利には $5\mu\text{m}\sim 200\mu\text{m}$ の範囲にある。

所期のバリア作用及び耐久性に関連して疎水性含浸層又はフィルム被膜は多一積層コーティング被膜として形成することができ、この場合焼き加工材料の疎水性化によって一体に形成された液密の縁層又は焼き加工工程後に塗布されたコーティング被膜として形成された液密の縁層は、液体に対する、殊に水、酸性食品、乳酸又は油脂に対するバリア作用を有している。コーティング被膜は場合によっては気密性、殊に水蒸気又は酸素に対して非透過性であることも可能である。

ポリエステル、ポリエステルアミド又はポリ乳酸をベースとするフィルムによるフィルムコーティングでは、フィルムはロール又はベントから取り出すことができる。フィルムは、場合により、付着助剤を使用して焼き加工工程からのまだ熱い成形体上に、また場合により融着結合により、設けることができ、或いはまた冷えた成形体上に真空下で、又は圧力空気により又は機械的押圧により被せることができる。

別の実施例では疎水性材料は、粉末、顆粒又はペレットの形をしており、成形体は散布、噴霧又は浸漬によって疎水性コーティング被膜を形成されるか、又は図1に示された、水密の縁層形成のための成形体のコーティングに代わる選択可能な手段として、焼き加工工程前に焼き加工材料内へ疎水性材料を入れることによって直接疎水性にされる。材料は熔融するのが有利であり、このため成形体は先行の焼き加工工程によってまだ熱い状態にある。

さらに、コーティングされた成形体の表面密度を、例えば後続の（精密－）プレス工程により多孔性を減少させることによって、高め、平滑な表面をうるようにし、その結果コーティング被膜の、例えば熱水、高熱の油脂等に対するバリア機能を高めることは有利である。成形体の表面と液密なコーティング被膜との間に付着助剤を使用する場合、この付着助剤はニトロセルロース又はポリビニルアルコールから成るのが有利であり、後者の場合には同時にガス遮断作用が一緒にえられる。

例えば深皿形の凹状に湾曲した包装—成形体の場合、疎水性コーティング被膜若しくは縁層として形成される部分は少なくとも内側に設けられるが、しかし場合によっては、外側にも設けられ、この場合包装—成形体の内側表面にはその表面層のバリア機能に、殊に十分な時間に互る耐湿性及び耐気候性があれば十分である外側表面よりも、場合により、耐熱性及び耐油脂性に関して、高い要求が課される。

焼き加工工程に続く疎水性含浸の別の実施例では、材料が懸濁液として又は溶液として焼き加工された成形体上に塗布され、この場合層は塗布後に硬化され、場合によっては特別な後処理—熱処理によって乾燥される。

溶液は疎水性物質のセルロースアセテート及び／又はセルロースアセテートプロピオネートの他に有利には少量の揮発性溶剤を含んでいる。従って例えば、溶剤としてアセトン又はエチルアセテートを含んでいる冷えた溶液を有利には冷却された成形体上に塗布することが可能であり又は成形体を該溶液中に浸漬することが可能である。

使用目的及び相応する適用等級に関連して成形体の内側及び／又は外側の液密コーティングが行われ、若しくは焼き加工工程中にこれに先立つ混合により液密縁層を有する成形体の疎水性特性の形成が保証される。この場合適用等級は、疎水性縁層のバリア機能が数日間保持されるという、バリア機能に対する要求が最も低い適用等級A1（室温25～40℃、相対空気湿度0～90%）から、耐冷水性が室温（25～40℃）でも24時間保持される適用等級A2を経て、95℃での耐沸騰強度が95℃で1時間保証される適用等級A3までである。個々の適用等級ごとにコーティング材料の層厚及び濃縮度が異なっている。

最も低い適用等級A1は殊に成形体の外側コーティングについて、成形体が同時に蓋によって閉鎖可能である場合又は包装成形体が開いたままであってコーティングが内側及び外側に設けられる場合を考慮したものである。使用目的に関連

して包装成形体の内装のために適用等級A2（耐冷水性）又はA3（耐沸騰強度）が設けられ、この場合外側コーティング被膜はコーティング品質に関して内側コーティング被膜より相応して低い又は同じ適用等級を有することができる。

成形体の湿分吸収性は、焼き加工工程の結果著しく厚い外皮層（図 12 の略示図参照）を適宜の離型剤（完全に液化した脂又は蠟）の使用によって焼き加工工程において形成することによっても、減少させることができる。

焼き加工された成形体上へ疎水性コーティング被膜を設ける前に成形体に、焼き加工された成形体の多孔性組織を閉鎖するために、充填剤で下塗りが施され、この場合充填剤としては例えば蠟、ポリマー、油脂を用いることができ、この下塗り材は同時に疎水性層のための付着助剤として役立つことができ、この場合付着助剤層はやはり浸漬、噴霧及び／又は加熱によって塗布することができる。

比較的高い適用等級（例えば A 3）のためには、比較的高い濃縮度（例えば 50 %）での疎水性コーティングが行われかつ何回（例えば 3 回）も行われる。同じ適用等級（例えば A 3）においてバリア機能に対する要求が少ない場合にはより低い濃縮度で十分であり、少なくとも 1 回の多重塗布を省略することができる。

焼き加工材料の疎水性化又は疎水性コーティング被膜の塗布による疎水性の、場合によっては液密の縁層の形成は、これと同時に封印性（蓋の密封）を生じさせるものでなければならず、また複雑でない仕方での成形体の着色若しくは印刷についても考慮すべきである。

有利には成形体の外側に、製品－耐用寿命中のバリア作用を指示するために、湿度及び／又は時間についてのインジケータを設けることができる。

疎水性縁層によっても損なわれることのない成形体の生分解性に関して言えば、使用後に包装体を、成形体の生分解性を一層促進するために、細かく粉砕す

ることも有利である。

場合によっては、発送のために、成形体を上記の生分解可能の材料の 1 つから成る付加的保護体としての収縮フィルムで包むことも可能である。

次に本発明による方法のさらに別の実施例を図 2 に付いて説明する。

この方法も（粉砕工程段を間に挿入して）図 1 の方法と同じく原材料として古紙又は生分解可能な繊維を含む別の繊維材料を使用するものであるが、出発材料（生分解可能な繊維を含む、繊維含有の原材料、殊にセルロース繊維含有の植物

性材料)としてはこの場合脱インキ処理材料、即ち脱色された古紙、が使用され、これは既に粉末乃至細かい削り屑状の状態にある。

この方法では既に十分に粉碎された脱インキ処理材料(又は粗製材料)は乾燥され又は天然澱粉の一部で湿化され、場合によっては図1の方法と同じく充填剤(これは天然澱粉との予備混合物として供給されることもできる)を添加され、また場合によっては先に述べた種類の溶剤及び/又は着色剤の添加によりこれと予備混合され、これに対して天然澱粉の他の部分は水で予備粉碎される。乾式予備混合によれば材料の高い均質化及び均等化が行われ、かつこれに続いて水の存在のもとで混合及び捏和のさらに別の方法工程が、脱インキ処理材料をその繊維組織まで、有利には弛められた繊維束まで解体して均質化された粘性材料を形成するために行われ、この粘性材料には、付加的に予備粉碎された澱粉分が、図1及び図4a, 4b; 5a, 5b, 図10, 図11による方法に関連して記載された、水、繊維材料、天然及び予備粉碎された澱粉の混合比を考慮して、添加される。実施例と関連して既に述べられたように、殊に乾式予備混合への添加によって既に材料の疎水性化及び疎水性縁層の形成が焼き加工工程中に行われる。

場合によっては溶剤を水の存在のもとで行われる混合及び捏和工程に添加することも可能であり、このことは充填剤の添加又は着色剤懸濁液の添加について

も同様である。この場合にも脱インキ処理材料のその繊維組織までの解体が、それもできるだけ材料を損なうことのない非切削的な解体が、特に比較的大きな弛められた繊維束を形成しながら、行われ、この場合一層改善された成形体の特性が、異なる繊維長さの繊維束混合物の所期の使用によって達成される。

古紙及び/又は脱インキ処理材料(又は繊維含有原料としての別の、セルロース及び澱粉を含有した生産残留物、図3の方法参照。又は粗製繊維材料)の成分と澱粉との乾式混合は成形体の表面品質を改善する。

その他の方法工程、調量並びに焼き加工工程(場合によっては前述の成形を伴う)は、殊に包装を目的とした成形体のベーキング技術的な製造のための、既に図1について説明された後半の方法工程並びにこれに続く、既に説明された形式

での成形体の疎水性コーティングと同じである。

既に図1の方法と関連して説明されたように、予備粉碎された澱粉と天然澱粉との混合物の使用によって、殊に予備粉碎された成分含量によって、焼き加工された成形体の弾性は著しく規定される。有利であることが示された含量比に関しては、図4a、4b及び図5a、5b、図10、図11に示されている。

焼き加工工程中に焼き加工型内に発生する、図7に付いて説明された蒸気圧（焼き加工型の型閉鎖力によって表わされる）によって、成形体の表面は同様に規定される。この蒸気圧は粘性材料の天然澱粉含量及び湿分含量に関連する。

焼き加工型内の蒸気圧は、型内の蒸気排出通路の横断面及び位置状態の、制御弁の使用を含む所望の形式での制御によって、制御することができる。

場合によっては、粘性材料を製造するための混合—及び捏和工程への付加的な水の添加（図2に破線で示されている）は全く省略することが可能であり、その結果、材料中の湿分、ひいてはまた天然澱粉粉碎のための水含量も、導入された予備粉碎澱粉の水含量によって規定される。この形式で焼き加工工程中の蒸気圧

比も、ひいてはまた成形体の表面品質もコントロールすることができる。天然澱粉は有利には乾燥物質の別の成分との混合工程で導入されるが、しかし少なくともその一部は直接、繊維束を解体し粘性材料を均質化する混合—捏和工程に導入することもできる（図2ではやはり破線で示されている）。これらの成分はこの場合乾燥した粉碎された古紙及び／又は脱インキ処理—材料、選択的に付加される溶剤及び／又は充填剤である。

成形体の構造、ひいてはまた強度は、古紙若しくは脱インキ処理—材料に対する澱粉の割合によって規定され、同様にまた使用される繊維束若しくは繊維の長さによって規定され、これらの繊維束若しくは繊維の長さは図8及び9に示されている比較モデルの研究が示すように、異なった強度の形成に著しく影響する。

殊に、異なる繊維長さの生分解可能な繊維、即ち0.5mm～ほぼ10mmの範囲の異なる繊維長さの繊維束若しくは繊維混合物を有する、有利には1mm～5mmの範囲の殊に薄壁の成形体用の繊維含有材料を、種々異なる成形体形状及び焼き加工型の型深さを考慮して、使用することは、強度に関して極めて有利な成果をも

たらず。

焼き加工工程で変性された若しくは予備粉碎された澱粉及び天然澱粉の使用と共に、短い繊維と長い繊維若しくは短い繊維束と長い繊維束との混合物又は長い繊維束と短い繊維との混合物を使用することにより、成形体の強度を驚くほど著しく高めることができる（図9参照）。

予備粉碎された若しくは変性された澱粉に比べて天然澱粉の含量が高い場合には、良好な表面がえられる一方、他方では成形体の弾性は比較的低くなり、これに対して、天然澱粉に比して予備粉碎された又は変性された澱粉の含量が高い場合には、成形体の良好な弾性がえられる一方、他方では成形体の表面は悪くなるということが判明した。

従って、その都度の用途及び成形体形状に関して、天然澱粉対予備粉碎された澱粉の比（有利には3：1）を、繊維含有材料若しくは異なる長さの繊維及び繊維束の混合物の繊維長さを考慮して、適当な比に設定すべきであり、この場合、150℃～200℃で0.5分～3分の比較的短い焼き加工工程をも考慮した殊に有利な比は、図10及び図11にその組成が図示された成形体に示されている。

本発明による方法のさらに別の実施例は図3に示されており、この場合出発材料としてセルロース繊維、古紙削り屑、アブラナ細片及び木削り屑（セルロース繊維）が生産廃棄物の代表例として選ばれており、この場合さらに別の生分解可能な繊維を含有した、殊にセルロースをベースとする生産廃棄物も使用することができる。

本発明による方法の枠内においては勿論また、それぞれ既に説明された、生分解可能な繊維組織（粗製繊維材料）、殊に繊維束が使用され、それも0.5mm～ほぼ50mmの繊維長さ（大きな面及び／又は厚壁の包装成形体においてはさらに高い値）、有利には1mm～5mm（殊に薄壁の軽量の包装成形体）のものが使用される。

図3は、方法が、製紙産業、食品産業、飼料産業からでる混合粗製材料若しくは古紙の種々異なるリサイクル材料を使用しても実施することができることを

明らかにしており、この場合図3ではこれらの材料は既に十分に粉碎されており、殊にシュレッダー、藁切機又は、ピンディスクミル、ハンマーミルのような粉碎機を使用して、換言すれば、繊維を損なわないようにするためにできるだけ裂断及び非切削加工によって、(かつまたセルロース繊維の吸水性を減少させるために)、既に十分に粉碎されており、この場合粉碎された原料は別の方法工程でまず、その繊維長さ及び澱粉含量を基準にして、それぞれさらに別の成分の調整(天然澱粉及び予備粉碎された澱粉の供給又は長い繊維若しくは繊維束と短い繊維若しくは繊維束との混合比の選択)のために、分級される。

繊維含有原料及び天然澱粉、場合によっては溶剤及び／又は充填剤(これらが乾燥した状態にあるとき)の乾式混合並びに液密の縁層形成のためのその他の方法工程は、図1及び2の方法について既に説明された方法工程と同じである。粉碎と塑性化との間の乾燥-予備混合は粘性材料をうるために有利であるが、しかしまた使用材料を混合-及び捏和工程の粘性材料に、場合によっては水の存在のもとで、直接供給することも可能である。

しかし、混合-及び捏和工程が水の供給なしに、専ら、過剰水のもとで予備粉碎された澱粉による湿分供給だけで、行われたときに、特に優れた成果がられることが示されており、この場合材料は高粘性の捏粉状になる。焼き加工工程中、天然澱粉の粉碎のために澱粉を含んだ羊水及び予備粉碎された澱粉から生じた過剰水が使用される。表面、構造、弾性、組織、強度及び安定性の点で特に優れた品質の成形体が、焼き加工型の型深さ若しくは成形体深さに関連して図10及び図11に示されたパラメータで、えられ、この場合弾性及び組織構造は予備粉碎された澱粉の使用によって著しく規定される。表面及び組織構造はさらに焼き加工工程中の蒸気発生条件、換言すれば粘性材料の、できるだけ低くすべき水含量によって著しく規定され、多くの場合、材料の準備のためには、過剰な水の存在のもとで予備粉碎された澱粉を添加するという形での間接的な給水に基づく加湿を制限するだけで十分である。この水分は天然澱粉を完全に粉碎するのに十分である。

さらに、使用される弛められた繊維束の繊維長さも、場合によっては単繊維の

繊維長さと共に、著しい影響を与え、この場合繊維の使用量は焼き加工型内における材料の流れ挙動を著しく規定し、成形体の幾何学的形状、殊に成形体の深さを考慮して選択されなければならない。この場合混合物中の短い繊維及び長い繊維（短い繊維束及び長い繊維束）の使用は、0.5 mm～5 mmの範囲の比較的固定された長さの、等級に分けられた繊維を使用した多くの場合において、図8及び9の比較から判るように、優れた成果を示した。しかし成形体に対する要求に関連して、10 mmまでのもっと長い繊維／繊維束の使用も可能であるが、この場合

にはまた例えば古紙の、前置された粉碎工程に対する要求も低くならない。このことは図1及び2の方法では示されていないが、異なる長さの繊維／繊維束－混合物を使用する場合、出発材料の評価のために、勿論ここでも繊維／繊維束の長さによる、若しくは澱粉含量に関して、繊維材料の等級化が行われる。

例えば湿った脱インキ処理－材料を使用する場合、図2及び3の方法における「乾燥混合」の工程は湿った状態で、場合によっては少量の水を供給しながら、行うことができる。

さらに、焼き加工工程のはじめに、捏粉状の材料のときにも型内の充填状態を改善しかつ場合により、焼き加工工程中、互いに不動に錠止された型両半部によってではなしに、下側の型板に対して上側の型板が僅かに後から押されるようにして、作業が行われるようにするために、未だ粘性の材料を既に閉じられた型内へ後から押し込むことも有利である。しかし一般的には、不動に錠止された両型板（両型板の一定の間隔＝焼き加工工程中の成形体の壁厚）を使用するベーキング技術を維持するだけで十分である。

必要な場合には、図1～3に示された方法による焼き加工工程に続いて、溶液、乳濁液又は懸濁液の形の液密性材料を、水蒸気－雰囲気中で塗布（噴霧）することによって、焼き加工型から取り出された成形体のコンディショニングを行うことができる。

図8及び9の比較は、専ら所定の若しくは近い範囲にある繊維長さのセルローズ繊維若しくは繊維束を使用した場合に対する異なる繊維長さの繊維混合物を使用した場合の利点を明らかに示している。

本発明による方法を実施するための有利な調合は図10及び図11に示されている。ここから判るように、粘性材料の全質量に対する繊維材料、殊に弛められた繊維束の使用量が15～30重量%であり、粘性材料の全質量に対する全澱粉

(天然澱粉+予備粉碎された澱粉)含量がほぼ40～50重量%であり、粘性材料の全質量における水含量がほぼ45～70重量%であり、粘性材料の全質量における予備粉碎された澱粉含量がほぼ10～15重量%であるときに、極めて深い成形体であっても、良好な強度、弾性、構造及び表面組織の成形体を本発明の方法により製造することができた。

他方において、より大きな澱粉含量及びより少ない繊維材料含量(殊に粗製繊維使用の場合)でも、極めて良好な成果が図11によるコーティングによってえられる(予備粉碎された澱粉含量を13重量%まで高める)。

図17～20には、本発明の方法によって製造された成形体の実施例が示されている。図17は、ヒンジ4によって結合されている底部及び蓋部2, 3を備えた包装成形体1を示し、これは例えば食品を、温かい状態でも、閉鎖可能に受容するのに適している。液密性の縁層はここでは詳細には示されていない。包装成形体1は少なくとも1つの内側の疎水性縁層、有利には適用等級A2のコーティング被膜を有している。

図18は成形体(半割シェル)を示し、これは相応する対応成形体に結合されて完全に閉じた1つの包装体にすることができる。このシェル状成形体は多数の円筒体区分状の凹部5を有しており、これらの凹部は長い区分6と短い区分7とに分けられ、この構成は、成形体の、真ん中のウェブ8によって分けられた反対側にも対称に繰り返されている。側方の「足」9はこの包装成形体の形状安定性を高めると共に、包装成形体の載置及び積み重ねの性能を改善する。このような包装成形体は例えばボールペン、リップスティック、化粧品、鉛筆、筆記用具の収納又は製薬調剤の包装管片の収納に使用することができる。このような場合、気候的な、外気の影響(湿度)に対して包装成形体1が有している十分な耐用性—適用等級A1—で一般に十分であろう。

図19及び20は、例えば花鉢、種入れ皿又はその他の包装用若しくは被覆用

に使用することができる比較的深い包装成形体1を示す。

以上に説明された方法によって製造される包装成形体は全て、生分解可能な疎水性化処理、換言すればセルロースアセテート及び／又はセルロースアセテートプロピオネートでの含浸又はポリエステル、ポリエステルアミド、若しくはポリ乳酸をベースとするフィルムによるフィルムコーティング処理にも拘わらず、迅速にかつ低コストで、かつまた形状安定性、破壊強度、弾性、組織密度及び表面品質に関して優れた材料特性をもって、製造することができた。

【図1】

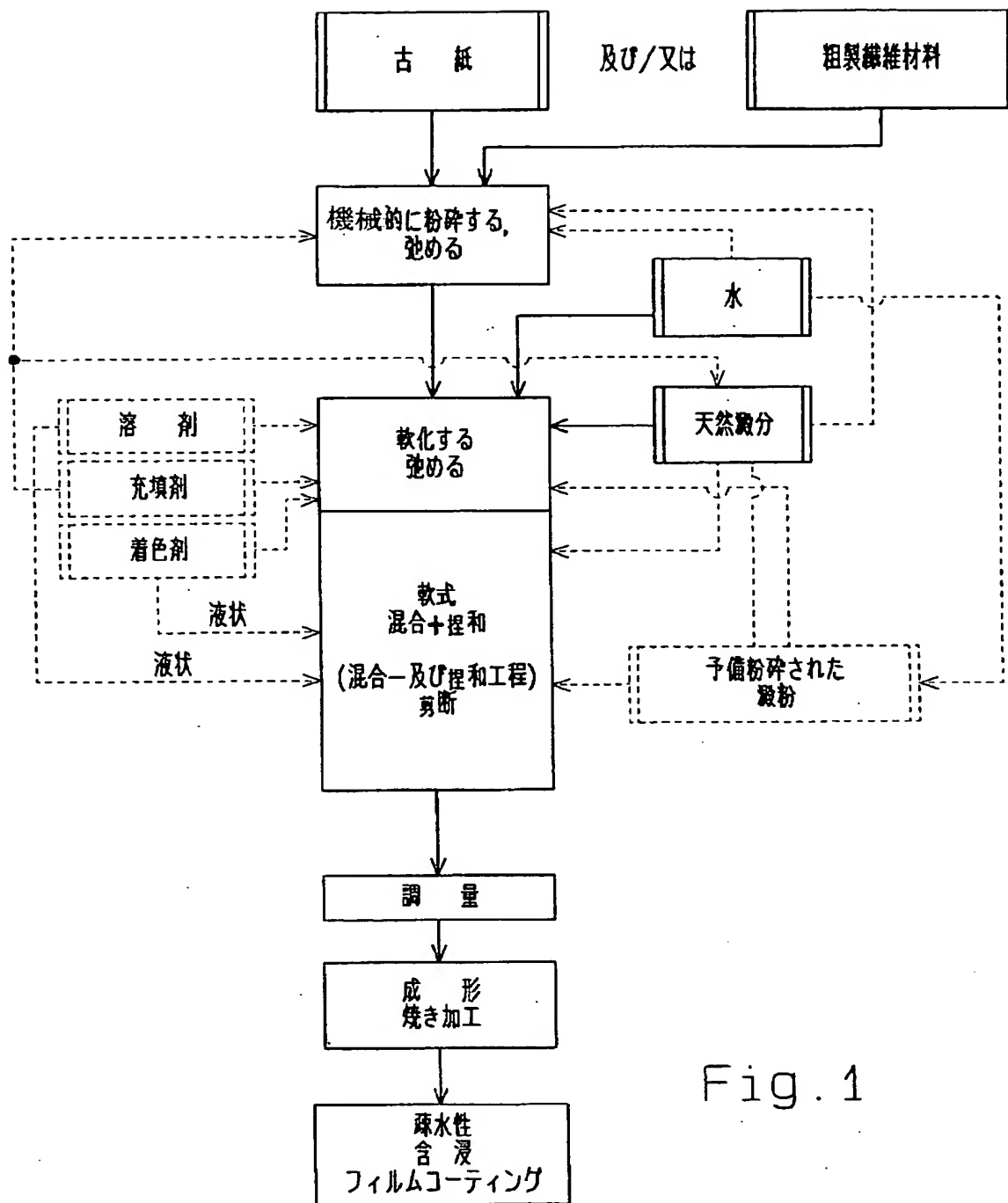


Fig. 1

【図2】

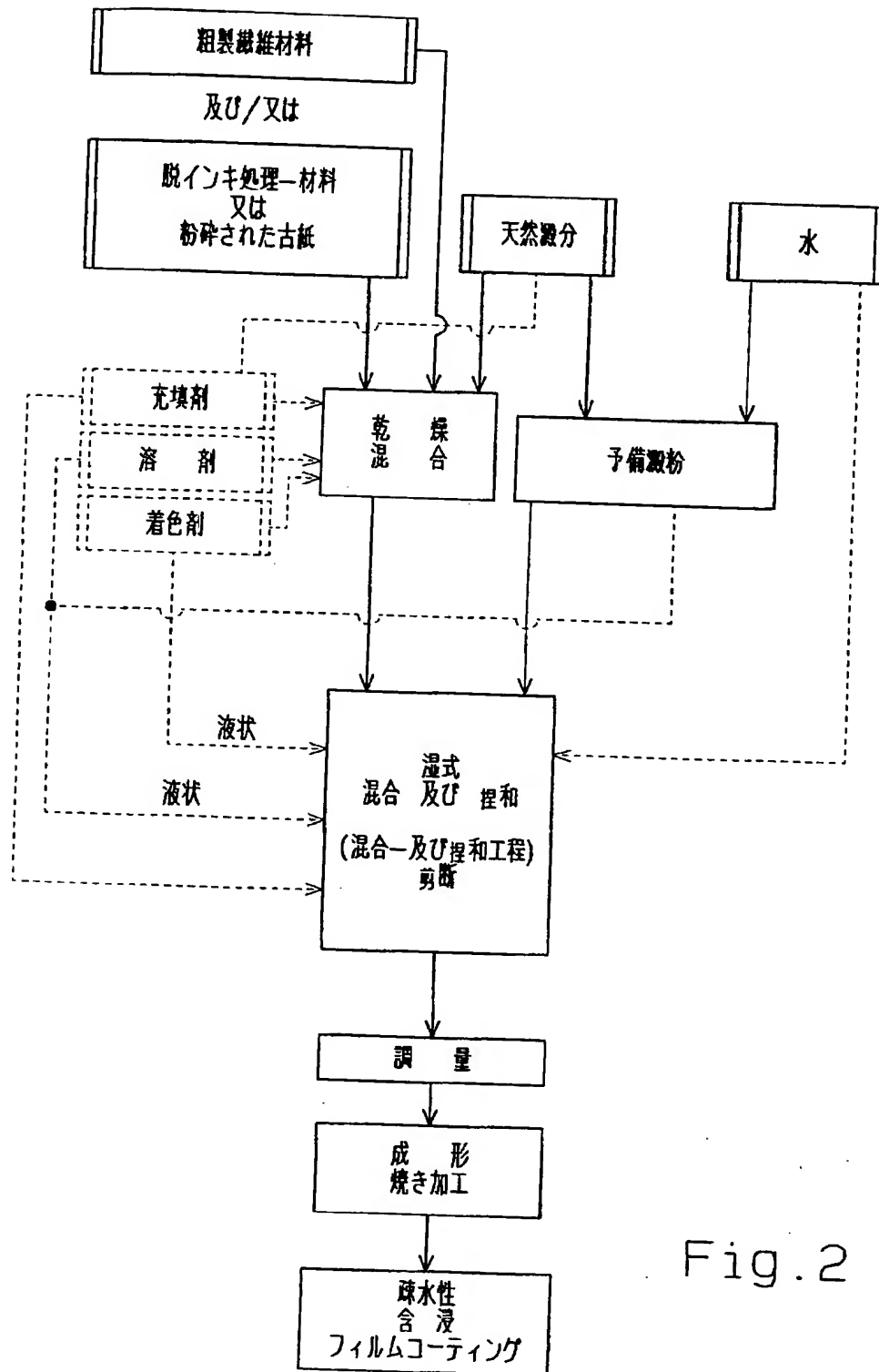


Fig.2

【図3】

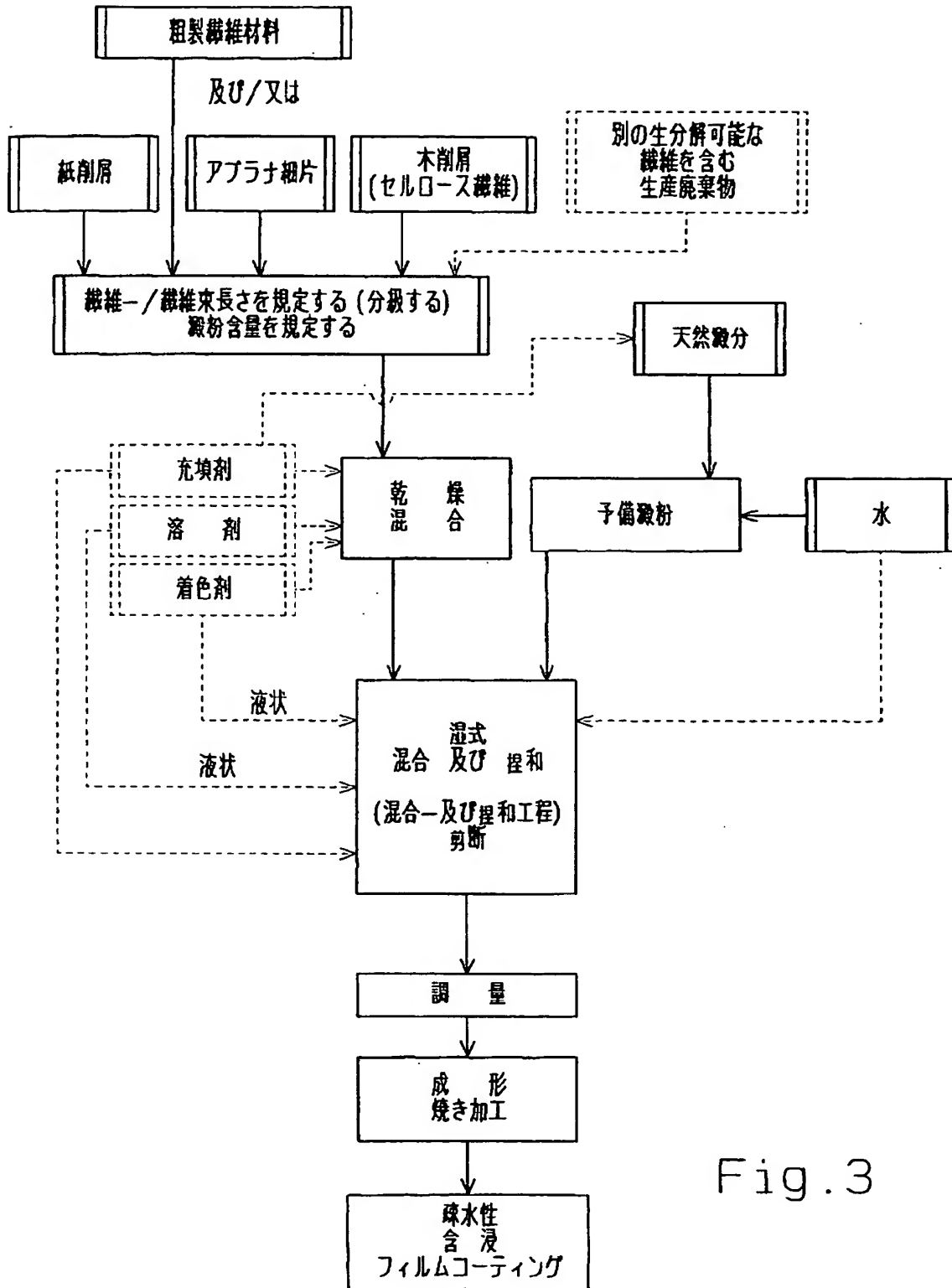


Fig.3

【図 4】

| | X_1 | X_2 | X_3 | X_4 | X_5 | X_6 | X_7 | X_8 | X_9 | X_{10} | X_{11} | X_{12} | X_{13} | X_{14} | X_{15} |
|---|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|
| a | 18, 7 | 28, 2 | 37, 3 | 47 | 56, 4 | 65, 8 | 75 | 84, 3 | 93, 3 | 102, 9 | 112, 3 | 122 | 131, 4 | 140, 8 | 150 |

X_{1-15} = 試験標本

a = 天然澱粉重量%

b = 水250重量% (纖維材料乾燥物質に対する)

c = 纖維材料100重量%

Fig. 4a

| | X_1 | X_2 | X_3 | X_4 | X_5 | X_6 | X_7 | X_8 | X_9 | X_{10} | X_{11} | X_{12} | X_{13} | X_{14} | X_{15} |
|---|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|--------|--------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|
| a | 18, 7 | 28, 2 | 37, 3 | 47 | 56, 4 | 65, 8 | 75 | 84, 3 | 93, 3 | 102, 9 | 112, 3 | 122 | 131, 4 | 140, 8 | 150 |
| b | 6, 3 | 9, 4 | 12, 7 | 15, 7 | 18, 8 | 21, 9 | 25 | 28, 3 | 31, 3 | 34, 9 | 37, 7 | 40, 7 | 43, 8 | 46, 9 | 50 |
| c | 24, 9 | 37, 8 | 50 | 62, 7 | 75, 2 | 87, 7 | 100 | 112, 7 | 124, 7 | 137, 8 | 150 | 162, 7 | 175, 2 | 187, 7 | 200 |

X_{1-15} = 試験標本

a = 天然澱粉重量%

d = 予備粉砕された澱粉重量%

e = 全澱粉重量%

b = 水250重量% (繊維材料乾燥物質に対する)

c = 繊維材料100%

Fig. 5a

【図 5】

比

| | y1 | y2 | y3 | y4 | y5 | y6 | y7 | y8 | y9 | y10 | y11 | y12 | y13 | y14 | y15 |
|------|----|----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| 試験標本 | | | | | | | | | | | | | | | |
| a | 25 | 94 | 113 | 131 | 150 | 169 | 188 | 206 | 225 | 244 | 263 | 281 | 300 | 150 | 75 |
| d | 75 | 31 | 38 | 44 | 50 | 58 | 63 | 69 | 75 | 81 | 88 | 94 | 100 | 100 | 100 |
| e | 50 | 75 | 100 | 125 | 150 | 175 | 200 | 225 | 250 | 275 | 300 | 325 | 350 | 375 | 400 |

a=天然澱粉重量%

d=予備粉砕された澱粉重量%

e=全澱粉重量%

b=繊維材料 (乾燥物質) に対する水500重量%

c=繊維材料100%

Fig. 5b

【図 6】

| 等級 | 繊維/繊維束長さ (mm) |
|----|---------------|
| 1 | 0, 96-1, 44 |
| 2 | 1, 92-2, 40 |
| 3 | 2, 40-2, 88 |
| 4 | 0, 72-2, 16 |
| 5 | 3, 06-3, 57 |
| 6 | 2, 55-4, 59 |
| 7 | 0, 24-1, 68 |
| 8 | 0, 24-4, 32 |

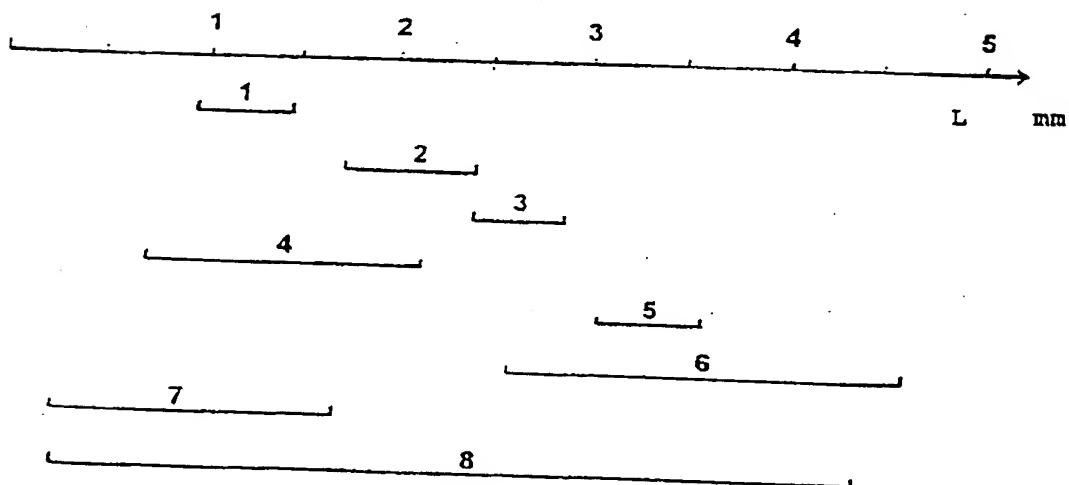


Fig. 6

【図 7】

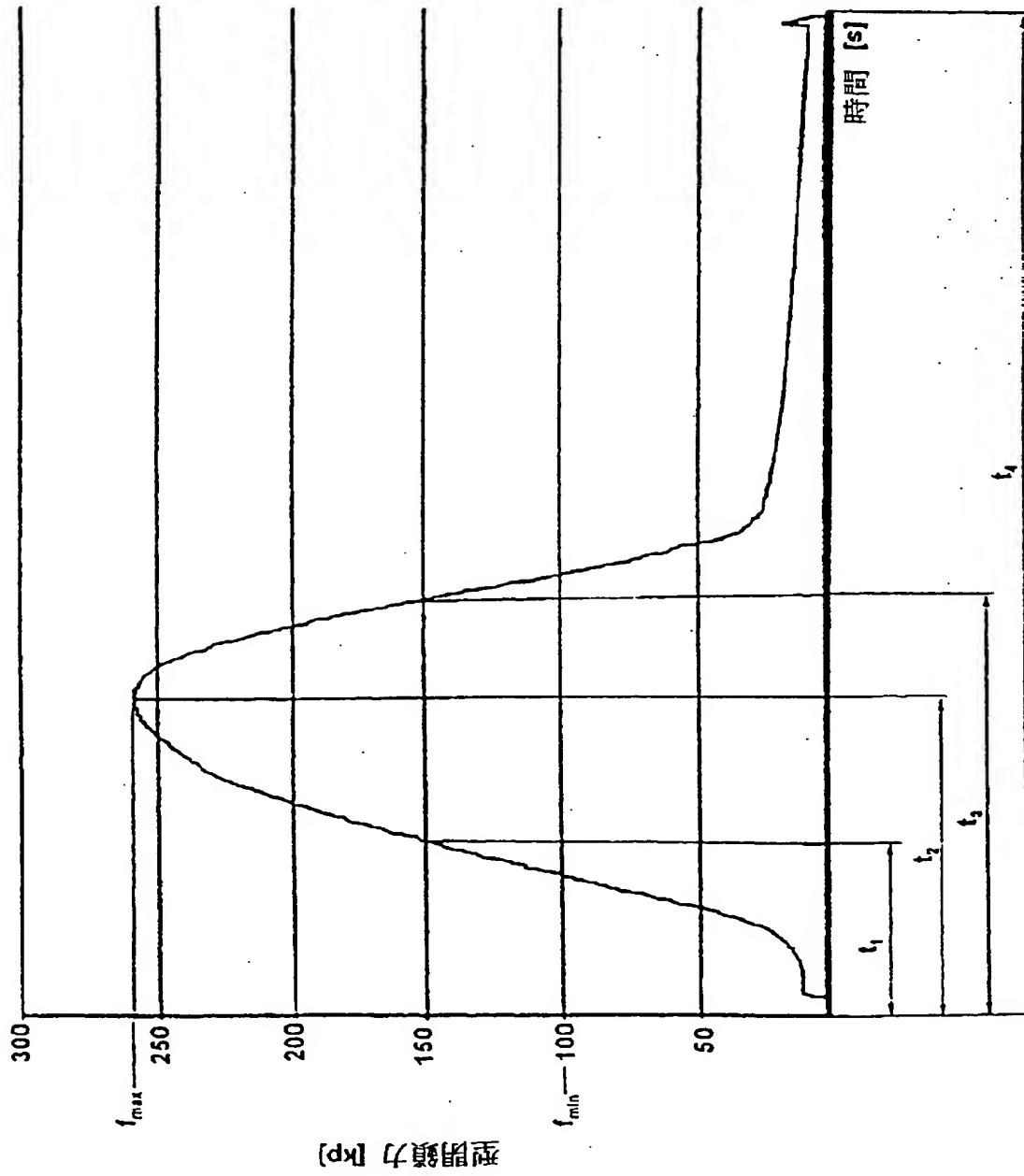


Fig. 7

【図8】

図6の繊維長さにより等級に分けられた繊維（繊維束）を使用

| 型深さ | -30mm | | | | | | | | -50mm | | | | | | | |
|--------|-------|---|---|---|---|---|---|---|-------|---|---|---|---|---|---|---|
| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 |
| 繊維長さ | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 表面/組織 | + | + | + | + | + | + | - | + | - | + | + | + | + | + | + | + |
| 強度/安定性 | - | - | - | + | + | - | + | + | + | - | - | + | - | + | + | + |
| 弾性/組織 | - | - | - | + | + | - | + | + | + | - | - | + | - | + | + | + |

| 型深さ | -80mm | | | | | | | | >80mm | | | | | | | |
|--------|-------|---|---|---|---|---|---|---|-------|---|---|---|---|---|---|---|
| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 |
| 繊維長さ | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 表面/組織 | + | + | + | + | + | + | + | + | + | + | + | + | + | + | + | + |
| 強度/安定性 | - | - | - | + | - | + | + | + | + | - | - | + | - | + | + | + |
| 弾性/組織 | - | - | - | + | + | - | + | + | + | - | - | + | - | + | + | + |

+ 要求に適合した成形体
 - 要求に適合しない成形体

Fig. 8

図6の異なる繊維長さの繊維の混合物を使用

| 型深さ | -30mm | -50mm | -80mm | >80mm |
|--------------|---------|-------------|-----------|-------------|
| 図6の繊維長さの組合わせ | 7+4 4+2 | 7+2+3 4+2+3 | 8 7+2+3+5 | 8 8+2+6 8+6 |
| 表面/組織 | - + | - + | + - | + - + |
| 強度/安定性 | + + | + + | + + | + + |
| 弾性/組織 | - + | + + | + + | + + |
| 繊維物質/親粉 | 60: 40 | 55: 45 | 50: 50 | 45: 55 |
| 親粉/水 | 0, 4: 1 | 0, 4: 1 | 0, 4: 1 | 0, 3: 1 |

- + 要求に適合した成形体
 - 要求に適合しない成形体

Fig. 9

【図10】

| 重量% | X ₁ | X ₂ | X ₃ | X ₄ | X ₅ | X ₆ | X ₇ | X ₈ | X ₉ | X ₁₀ | X ₁₁ | X ₁₂ | X ₁₃ | X ₁₄ | X ₁₅ |
|--------------------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| 全材料に対する 凝結物質 | 26.7 | 25.8 | 25 | 24.2 | 23.5 | 22.8 | 22.2 | 21.6 | 21.1 | 20.5 | 20 | 19.5 | 19 | 18.6 | 18.2 |
| 全材料に対する 全炭粉 | 6.6 | 9.7 | 12.5 | 15.2 | 17.7 | 20.1 | 22.2 | 24.3 | 26.2 | 28.2 | 30 | 31.7 | 33.4 | 34.9 | 36.3 |
| 全材料に対する 水 | 66.7 | 64.5 | 62.5 | 60.6 | 58.8 | 57.1 | 55.6 | 54.1 | 52.7 | 51.3 | 50 | 48.8 | 47.6 | 46.5 | 45.5 |
| 全材料に対する 予備粉砕された 炭粉 | 1.6 | 2.4 | 3.2 | 3.8 | 4.4 | 5 | 5.5 | 6.1 | 6.6 | 7.1 | 7.5 | 7.9 | 8.4 | 8.7 | 9 |

X₁₋₁₅ = 試験標本

Fig. 10

材料中の重量パーセント

| 重量% | y1 | y2 | y3 | y4 | y5 | y6 | y7 | y8 | y9 | y10 | y11 | y12 | y13 | y14 | y15 |
|--------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| 総炭/材料 | 14, 3 | 13, 8 | 13, 3 | 12, 9 | 12, 5 | 12, 1 | 11, 8 | 11, 4 | 11, 1 | 10, 8 | 10, 5 | 10, 3 | 10, 0 | 11, 8 | 12, 9 |
| 全炭粉/材料 | 14, 3 | 17, 2 | 20, 0 | 22, 6 | 25, 0 | 27, 3 | 29, 4 | 31, 4 | 33, 3 | 35, 1 | 36, 8 | 38, 5 | 40, 0 | 29, 4 | 22, 6 |
| 予備粉砕された炭粉/材料 | 10, 7 | 4, 3 | 5, 0 | 5, 6 | 6, 3 | 6, 8 | 7, 4 | 7, 9 | 8, 3 | 8, 8 | 9, 2 | 9, 6 | 10, 0 | 11, 8 | 12, 9 |
| 水/材料 | 71, 4 | 69, 0 | 66, 7 | 64, 5 | 62, 5 | 60, 8 | 58, 8 | 57, 1 | 55, 6 | 54, 1 | 52, 8 | 51, 3 | 50, 0 | 58, 8 | 64, 5 |

y1-15=試験標本

Fig. 11

【図12】

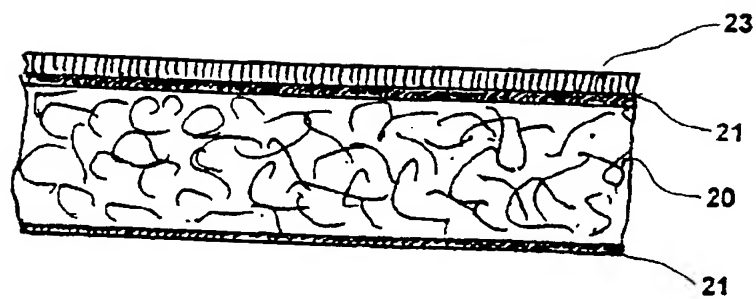


Fig. 12

【図13】

トレイ 寸法 112×200×17, 5mm
 鉢 寸法 ϕ 125mm, 容積 500ml, 高さ 76mm

調合: y14

コーティング: セルロースアセレート (CA)

TS: 4, 5%~15重量% 噴霧溶液における乾燥物質

η : 20-4000mPas (粘度)

塗布: 噴霧, 注型, 浸漬

積層: 1-3 (層数)

溶剤: アセトン

| 形態 | 厚さ | コーティング 被膜 | 方法 | 耐用性 | | |
|-----|------------|--------------|----|--------------|-----------------|-----------------|
| | | | | 水100℃ 1時間 | 油 (常温) 3日 | 水 (常温) 3日 |
| 鉢 | 89 μ m | 3.8g | 注型 | + | + | + |
| トレイ | 79 μ m | 2.3g | 注型 | + | + | + |
| 鉢 | 65 μ m | 2.8g | 噴霧 | + | + | + |
| トレイ | 68 μ m | 2.0g | 噴霧 | + | + | + |
| トレイ | 58 μ m | 1.7g | 噴霧 | + | + | + |
| 鉢 | 34 μ m | 1.5g | 噴霧 | - | - | - |
| トレイ | 27 μ m | 0.8g | 噴霧 | - | - | - |

Fig.13

【図14】

トレイ 寸法 112×200×17, 5mm
 鉢 寸法 ϕ 125mm, 容積 500ml, 高さ 76mm

調合: y14

コーティング: セルロースアセートプロピオネート (CAP)

TS: 9重量%~20重量% 噴霧溶液中における乾燥物質

η : 200~6000mPas (粘度)

塗布: 噴霧, 注型, 浸漬

積層: 1~3 (層数)

溶剤: アセトン

| 形態 | 厚さ | 方法 | 耐用性 | | |
|-----|------------|----|--------------|-----------------|-----------------|
| | | | 水100℃ 1時間 | 油 (常温) 3日 | 水 (常温) 3日 |
| 鉢 | 88 μ m | 注型 | + | + | + |
| トレイ | 88 μ m | 注型 | + | + | + |
| 鉢 | 58 μ m | 噴霧 | + | + | + |
| トレイ | 70 μ m | 噴霧 | + | + | + |
| トレイ | 56 μ m | 噴霧 | + | + | + |
| 鉢 | 33 μ m | 噴霧 | - | - | - |
| トレイ | 22 μ m | 噴霧 | - | - | - |

Fig. 14

【図15】

トレイ 寸法 112×200×17, 5mm
 鉢 寸法 ϕ 125mm, 容積 500ml, 高さ 76mm

| Nr. | フィルム | 厚さ | 17.5mm深さ のトレイ深絞り 加工性 | 76mm深さの鉢 深絞り加工性 | 水100℃ 1時間 油 (常温) 3日 水 (常温) 3日 | | |
|-----|---------------|-------------|----------------------------|--------------------|--|---|---|
| | | | | | に対する耐性 | | |
| 1 | ポリエステル アミド | 100 μ m | + | - | - | + | + |
| | | 150 μ m | + | - | - | + | + |
| 2 | ポリエステル | 70 μ m | + | - | - | + | + |
| 3 | ポリ乳酸 (剛性) | 50 μ m | - | - | - | + | + |
| | | 100 μ m | - | - | - | + | + |
| 4 | ポリ乳酸 (弾性) | 50 μ m | + | - | + | - | - |
| | | 100 μ m | + | + | + | - | - |

| フィルム | 融点 |
|------|---------|
| 1 | ほぼ 120℃ |
| 2 | ほぼ 85℃ |
| 3 | ほぼ 115℃ |
| 4 | ほぼ 130℃ |

Fig. 15

【図 16】

セルロースアセテート/セルロースアセテートプロピリネート

| | 可塑剤 10-30 重量% | | | | 可塑剤 なし |
|-----|---------------|------------------|----------------|--------------------|-----------|
| | ジェチル フタレート | グリセリン トリアセテート | トリブチル シトレート | アセチルトリブチル シトレート | |
| CA | V+/H+ | V+/H+ | V-/H- | V-/H- | HO |
| CAP | V+/H+ | V+/H+ | V+/H+ | V+/H+ | H+ |

記号の説明: +=良 O=中間 -=劣
 V=融和性 H=付着性

Fig. 16

【図17】

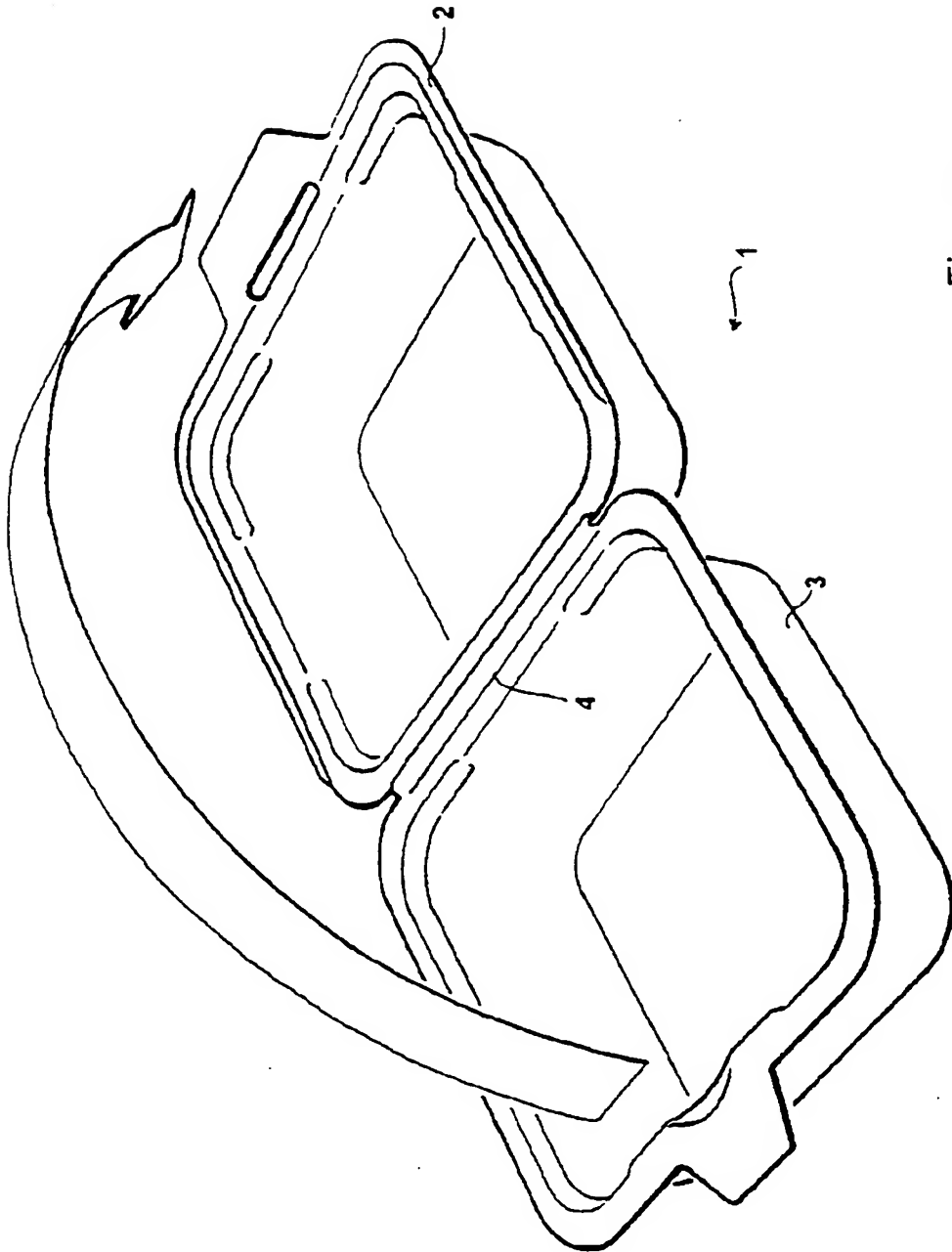


Fig. 17

【図18】

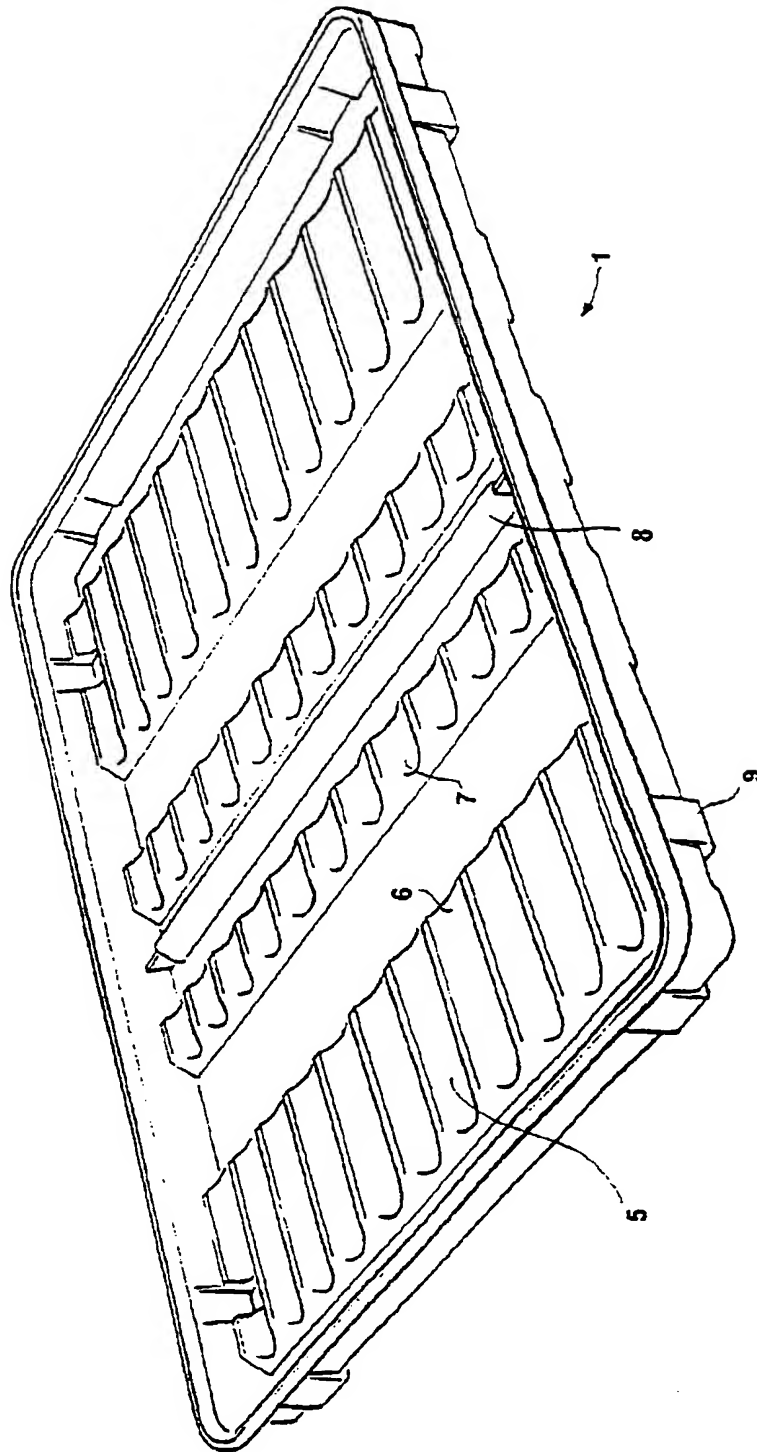


Fig. 18

【図19】

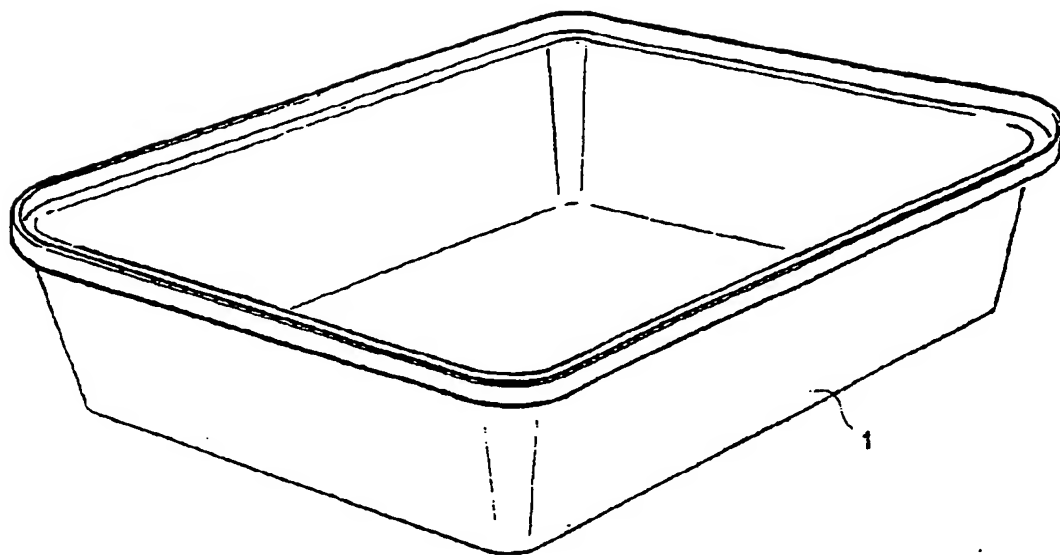


Fig. 19

【図20】

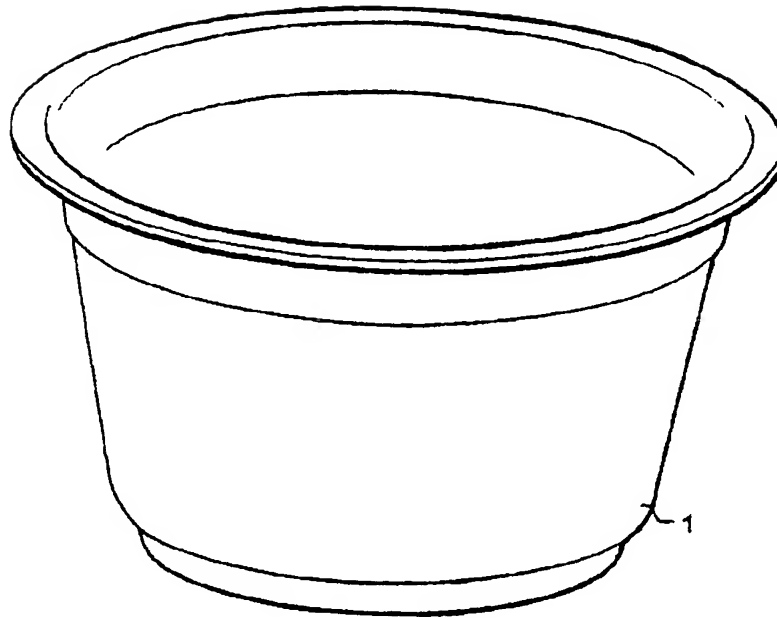


Fig. 20

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/JP 96/04016

| | | |
|--|---|---|
| A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 C08L3/02 C08J7/04 B65D65/46 | | |
| According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC | | |
| B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 C08L C08J B65D | | |
| Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched | | |
| Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) | | |
| C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT | | |
| Category | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
| A | WO 95 20628 A (RAPIDO WAAGEN- UND MASCHINENFABRIK GMBH) 3 August 1995 cited in the application see claims --- | 1,2, 23-53 |
| A | EP 0 474 095 A (BÜHLER AG) 11 March 1992 cited in the application see column 5, line 41 - line 45 see claim 9 --- | 1,2,48 |
| A | WO 94 13734 A (FRANZ HAAS WAFFELNASCHINEN INDUSTRIEGESELLSCHAFT MBH) 23 June 1994 see claims --- | 1,5,48, 49 |
| -/- | | |
| <input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex. | | |
| * Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" documents of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "A" document member of the same patent family | | |
| Date of the actual completion of the international search 9 January 1997 | | Date of mailing of the international search report 16. M. 97 |
| Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016 | | Authorized officer Mazet, J-F |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

| C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT | | International Application No. PCT, EP 96/04016 |
|--|--|---|
| Category | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
| A | <p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 18, no. 421 (C-1234) [6761] , 8 August 1994 & JP 06 125718 A (SADAMASA ANDO). 10 May 1994, see abstract</p> <p>-----</p> | |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT, EP 96/04016

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---------------------|--|--|
| W0-A-9520628 | 03-08-95 | DE-A- 4402284 EP-A- 0741761 | 03-08-95 13-11-96 |
| EP-A-474095 | 11-03-92 | CH-A- 680925 AT-T- 129611 DE-D- 59106809 | 15-12-92 15-11-95 07-12-95 |
| W0-A-9413734 | 23-06-94 | CA-A- 2150929 CZ-A- 9501312 EP-A- 0672080 JP-T- 8504452 PL-A- 309250 SK-A- 69995 US-A- 5576049 | 23-06-94 13-12-95 20-09-95 14-05-96 02-10-95 06-12-95 19-11-96 |

フロントページの続き

- (72)発明者 イムホフ、ウテ
ドイツ連邦共和国 D-01640 コスヴィ
ク カールホイゲルヴェク 38
- (72)発明者 ミハリク、ハネローレ
ドイツ連邦共和国 D-01257 ドレスデ
ン ロベルト・ベネット・シュトラッセ
13